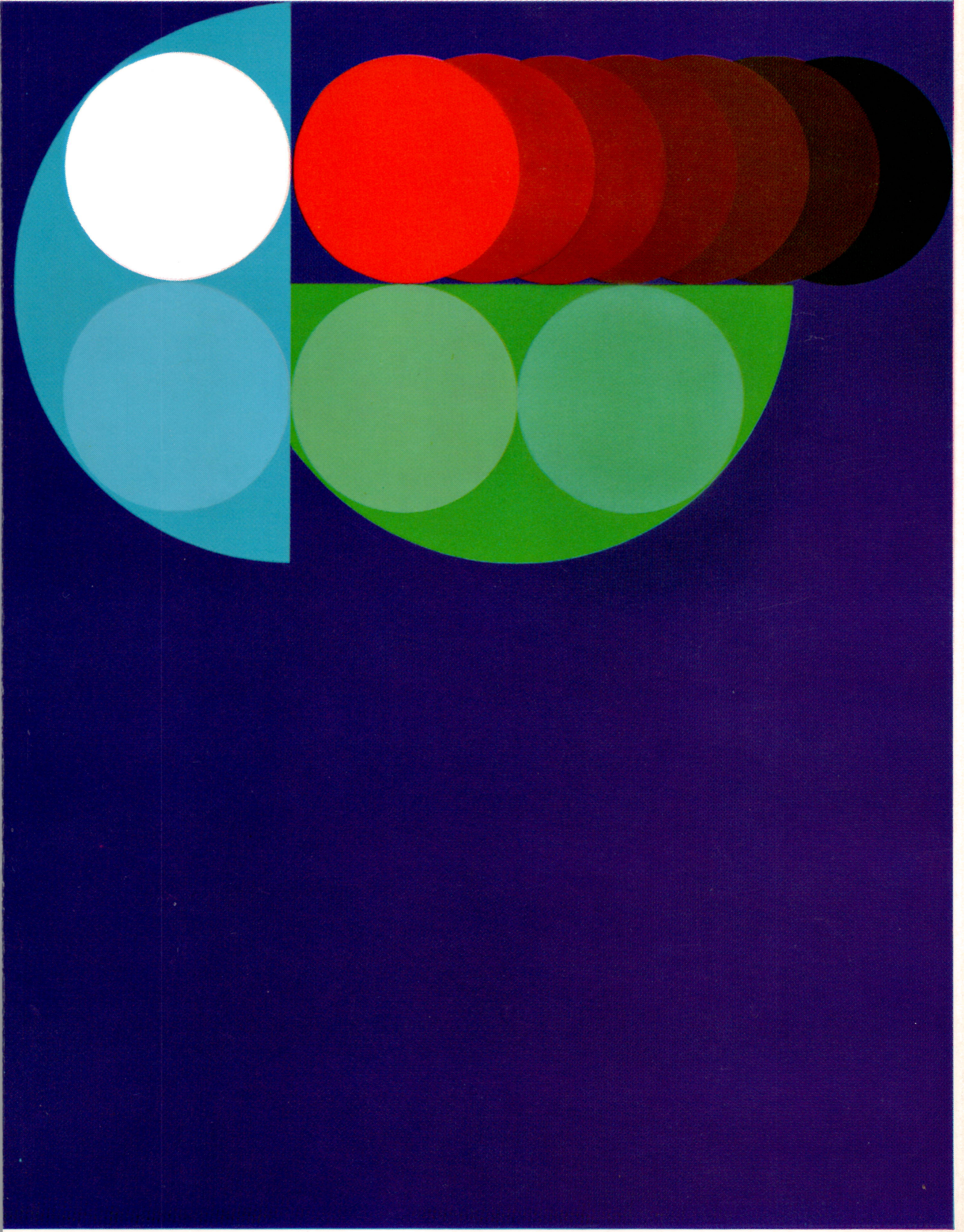
brennstoffkreislauf



Heft 19

Schriftenreihe des Deutschen Atomforums

Schriftenreihe des Deutschen Atomforums Heft 19

Der Brennstoffkreislauf

J. Höchel · G. Matz
H. Schweickert · H. Weidinger

Herausgegeben vom
DEUTSCHEN ATOMFORUM e.V., BONN

Druck: Thenée Druck KG, Bonn
Umschlagentwurf: Rolf Lederbogen, Ettlingen

Einleitung

Die Existenz des Brennstoffzyklus ergibt sich aus folgenden Besonderheiten der Energieerzeugung durch Kernspaltung. Einerseits stellt der Brennstoff im Gegensatz zu den fossilen Brennstoffen einen erheblich höheren spezifischen Wert dar (Größenordnung 750 000,— DM/t), andererseits ist es aus physikalischen Gründen nicht möglich, den Brennstoffinhalt bei einmaligem Einsatz im Reaktor voll zu nutzen. Zur Aufrechterhaltung der Kettenreaktion ist stets eine bestimmte Mindestmenge an Spaltstoff notwendig, außerdem absorbieren während des Betriebes entstehende Spaltprodukte Neutronen, die der Kettenreaktion verlorengehen. Der Brennstoff wird also bereits aus dem Reaktor entfernt, wenn noch beträchtliche Spaltstoffmengen in ihm enthalten sind. Zusätzlich bilden sich andere wertvolle Produkte, besonders Plutonium, das seinerseits zur Kernspaltung herangezogen werden kann. Entladene Brennelemente werden deshalb normalerweise einer chemischen Wiederaufarbeitung zugeführt, aus der die für die Spaltung verwendbaren Stoffe von den Spaltprodukten getrennt und wiedergewonnen werden können. Der Kreislauf schließt sich, indem diese Spaltstoffe wieder zu Brennelementen verarbeitet werden (Abb. 1).

Hoher Wert nuklearer Brennstoffe

Bildung von Plutonium

Unsere Broschüre will die einzelnen charakteristischen Schritte dieses Kreislaufes betrachten und erklären. Bemerkenswert ist, daß der prinzipielle Aufbau des Brennstoffkreislaufes unabhängig ist von der Vielgestaltigkeit kommerziell verwendeter Reaktor- und Brennelementkonzepte.

Die hohen Anforderungen an die Zuverlässigkeit der Brennelemente, bedingt durch die aus physikalischen Gründen erforderliche genaue Anordnung des Brennstoffes im Reaktor und die lange Verweilzeit der Elemente im Reaktor (3-4 Jahre) führen zu einem hohen Aufwand bei der Herstellung der Elemente. Die Beschreibung vom Aufbau und von der Herstellung der Brennelemente nimmt deshalb den Hauptteil der Broschüre ein.

Brennelement-herstellung

Da entladener Brennstoff stark radioaktiv ist, ist auch die Wiederaufarbeitung ein schwierig durchzuführender technischer Prozeß. Diese hohen Aktivitäten machen auch für die Transporte zwischen den einzelnen Schritten des Zyklus aufwendige Sicherheitsvorkehrungen erforderlich.

Wieder-aufarbeitung

Einsatz- und Umsetzplanung der Brennelemente im Reaktor, die gelegentlich als „innerer" Brennstoffkreislauf zusammengefaßt und dem „äußeren" gegenübergestellt werden, stellen einen eigenen Problemkreis dar. Der innere Brennstoffkreislauf und das Verhalten der Brennelemente im Reaktor werden in diesem Band nicht behandelt.

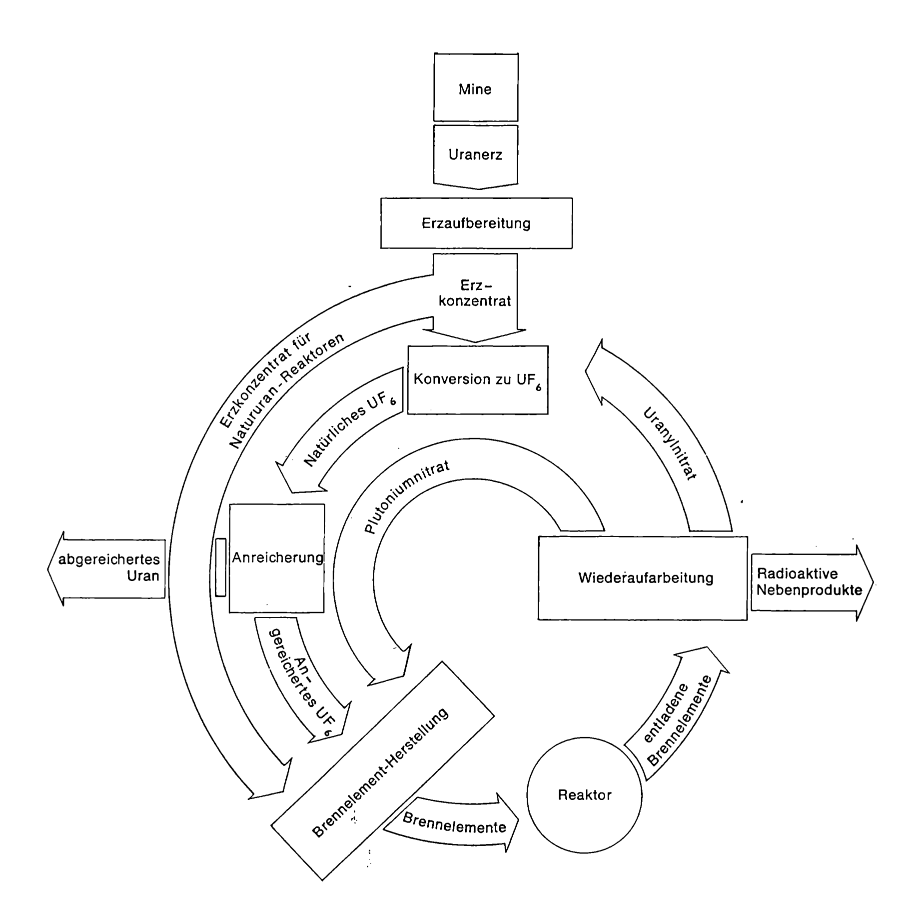


Abb. 1 Der Brennstoffzyklus. Der Fluß des Brennstoffs im Brennstoffzyklus ist gegen den Uhrzeiger angeordnet. Im Bild oben erfolgt die Einspeisung frischen Brennstoffs. Abgereichertes Uran, das beim Anreicherungsprozeß anfällt, verläßt im Bild links den Zyklus. Wiedereinsatz ist bei Brutreaktoren möglich. Die bei der chemischen Aufarbeitung der Brennelemente übrigbleibenden radioaktiven Nebenprodukte werden im Bild rechts ausgeschleust (siehe Kap. 7).

Uranversorgung Ausgangspunkt des Brennstoffzyklus ist die Uranversorgung. Durch den absehbaren Anstieg der Nachfrage an Uran wurde die Erschließung von Rohstoffquellen an den verschiedenen Punkten der Erde vorangetrieben. Für die nächsten Jahre und Jahrzehnte erscheint dadurch die Uranversorgung als gut gesichert. Einer Verknappung der Versorgung soll durch Einsatz von Brutreak-

toren Rechnung getragen werden, die auch den nichtspaltbaren Anteil des Urans (U-238) nutzen können. Hierbei kommt auch das aus der Aufbereitung stammende Plutonium zur Verwendung.

Urananreicherung

Uran wird nur in speziellen Reaktortypen in der natürlich vorkommenden Anreicherung an U-235 (0,7 %, Rest U-238) eingesetzt. In den meisten Fällen wird Uran mit einer Anreicherung von ca. 2-3 % verwendet. Die Erzielung einer solchen Anreicherung erfordert sehr aufwendige Anlagen, so daß auf diesen Schritt ein nennenswerter Anteil (rund ein Drittel) der gesamten mit dem Zyklus verbundenen Kosten entfällt.

Radioaktiver Abfall

Der Endlagerung der radioaktiven Abfallstoffe sowie der Verwendung dieser Stoffe und der aufgearbeiteten Brennstoffe sind die restlichen Kapitel dieser Broschüre gewidmet.

Die volkswirtschaftliche Bedeutung des Brennstoffzyklus läßt sich am besten ermessen, wenn man die folgenden abgerundeten Zahlen betrachtet. Sie gelten für die Erstladung eines 1200 MWe-Reaktors vom Leichtwassertyp.

Uranrohstoff	ca.	35 Mio DM
Anreicherung	ca.	40 Mio DM
Brennelementherstellung	ca.	40 Mio DM
Wiederaufarbeitung	ca.	10 Mio DM
Transporte	ca.	3 Mio DM
	ca.	128 Mio DM

Bezogen auf die erzeugte kW-Stunde machen diese Kosten andererseits jedoch nur etwa 0,6-1 Dpf. aus. Dies demonstriert den beträchtlichen wirtschaftlichen Anreiz, der sich daraus trotz des, absolut gesehen, hohen Aufwandes im Brennstoffkreislauf für die nukleare Stromerzeugung ableiten läßt.

Diese Broschüre entstand unter Mitarbeit von:

Dr. H. Baatz, Transnuklear GmbH, Wolfgang b. Hanau

Mr. T. J. Heal, UKAEA, Springfields, England

Dr. F. Herrmann, Nukem GmbH, Wolfgang b. Hanau

Dr. J. Höchel, Interatom, Bensberg

Dr. K. L. Huppert, Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH, Leopoldshafen

Dr. H. Huschka, Nukem GmbH, Wolfgang b. Hanau

Dr. H. Keese, Nukem GmbH, Wolfgang b. Hanau

Dr. G. Matz, Nukem GmbH, Wolfgang b. Hanau (Koordination und Gesamtredaktion)

Dr. K. P. Messer, Uranit, Uranisotopen-Trennungsgesellschaft mbH, Jülich

Dr. F. Plöger, RBG, Reaktor-Brennelemente GmbH, Wolfgang b. Hanau

Dr. G. Schneider, Degussa ZN, Wolfgang b. Hanau

Dr. R. Schwarzwälder, KRT, Kernreaktorteile GmbH, Großwelzheim

Dr. H. Schweickert, Siemens AG, Erlangen

Dr. W. Stoll, Alkem GmbH, Wolfgang b. Hanau

Dr. H. Weidinger, AEG Kernenergieversuchsanlage, Großwelzheim

DI A. Wolf, Nukem GmbH, Wolfgang b. Hanau

Inhaltsverzeichnis

Einleitung

1.	Brennstoffversorgung	9
1.1	Brennstoffbedarf	9
1.2	Weltvorräte an Kernbrennstoffen	11
1.3	Gewinnung von Uranerzkonzentrat	14
1.3.1	Abbau und Aufbereitung von Uranerz	14
1.3.2	Produktionskapazitäten	16
1.4	Konversion von Uranerzkonzentrat zu Uranhexafluorid	17
2.	Urananreicherung	19
2.1	Bedarf an angereichertem Uran	19
2.2	Methoden der Urananreicherung	21
2.2.1	Diffusion	21
2.2.2	Zentrifuge	23
2.2.3	Trenndüse	23
2.3	Möglichkeiten der Deckung des deutschen und europäischen Trennarbeitsbedarfs und wirtschaftliche Konsequenzen	24
2.3.1	Versorgung durch vorhandene Diffusionsanlagen	24
2.3.2	Versorgung nach dem Zentrifugenverfahren	26
2.3.3	Versorgung durch das Trenndüsenverfahren	27
2.3.4	Europäische Diffusionsanlage	28
3.	Brennelemente	29
3.1	Elementaufbau	32
3.1.1	Konstruktive Merkmale und besondere Anforderungen	37
3.1.2	Brennstoffe, Brutstoffe, Werkstoffe	58
3.2	Herstellung von Elementen mit Uranoxid	72
3.2.1	Brennstoffherstellung	72
3.2.2	Hüllrohrherstellung	80
3.2.3	Brennstabherstellung	80
3.2.4	Brennelementherstellung	86
3.3	Herstellung von Magnox Elementen	91
3.3.1	Herstellung der Uranstangen	91
3.3.2	Montage der Brennelemente	94

3.4 Herstellung von Hochtemperaturelementen 97
3.4.1 Herstellung der beschichteten Brennstoffpartikeln 97
3.4.2 Brennelementherstellung 99
3.5 Herstellung von MTR-Elementen 103
3.5.1 Herstellung der Brennstoffkerne 104
3.5.2 Herstellung der Brennstoffplatten 105
3.5.3 Montage zu Standard-MTR-Elementen 106
3.5.4 Herstellung von Elementen für fortgeschrittene Reaktorkonzepte 107
3.6 Herstellung von Elementen mit plutoniumhaltigem Brennstoff 108
3.6.1 Besonderheiten der Verarbeitung 109
3.6.2 Herstellung von metallischem und keramischem Brennstoff 112
3.6.3 Herstellung der Brennstäbe und Brennelemente 114

4. Transport von Kernbrennstoffen 118
4.1 Allgemeine Probleme des Transports radioaktiver Stoffe 118
4.2 Transport unbestrahlter Kernbrennstoffe 119
4.3 Transport bestrahlter Kernbrennstoffe 121
4.4 Weitere Entwicklung 124

5. Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen 125
5.1 Wiederaufarbeitungsverfahren 125
5.1.1 Aufschluß des Brennstoffs 126
5.1.2 Reinigungsverfahren 127
5.2 Technologische Besonderheiten bei der Wiederaufarbeitung 131
5.3 Übersicht über bestehende Anlagen 132

6. Behandlung und Endlagerung radioaktiver Abfälle 136

7. Wiedereinsatz von aufgearbeitetem Brennstoff 137
7.1 Uran 138
7.2 Plutonium 140
7.3 Sonstige Stoffe 143

1. Brennstoffversorgung

H. Keese

1.1 Brennstoffbedarf

In welchem Maße sich in Zukunft der Bedarf an Uran als Kernbrennstoff entwickelt, hängt vom Wachstum der Kernenergie ab. Alle Überlegungen hinsichtlich des zukünftigen Brennstoffbedarfs und der für die verschiedenen Verarbeitungsschritte benötigten Kapazitäten müssen sich daher an der Steigerungsrate der installierten nuklearen Kraftwerksleistung orientieren.

Nukleare Leistung 1980

Seit Mitte der 60er Jahre wurden immer höhere Schätzwerte für die zu erwartenden installierten Kernkraftwerksleistungen der freien Welt veröffentlicht. Während man im November 1962 in den USA für das Jahr 1980 eine installierte Kernkraftwerksleistung von etwa 40 000 MWe schätzte („Report to the President"), erwartete man im November 1967 bereits für das gleiche Bezugsjahr etwa 145 000 MWe. Entsprechende Voraussagen für das gleiche Bezugsjahr in der Bundesrepublik nannten 1964/65 etwa 15 000 MWe (Hinweisendes Programm EURATOM). Im Jahre 1968 wurden im 3. Atomprogramm für 1980 etwa 25 000 MWe für die Bundesrepublik geschätzt.

Die Verzögerung beim Bau bzw. der Bestellung von Kernkraftwerken, die man in den letzten 2½ Jahren beobachten konnte, führte zu einer kritischen Überprüfung der bisherigen Prognosen. Heute nimmt man an, daß die für die USA geschätzte nukleare Leistung im Jahre 1980 den genannten Wert von ca. 145 000 MWe wahrscheinlich erreichen wird; in den übrigen Ländern der westlichen Welt dürfte sich dagegen die Kernenergie langsamer entwickeln als erwartet. Für Westeuropa ist eine installierte Kernkraftwerksleistung von 80 000–90 000 MWe als realistisch anzusehen, wobei auf die Bundesrepublik voraussichtlich etwa 23 000 MWe entfallen werden.

Abb. 2 zeigt, welche Entwicklung der installierten Kernkraftwerksleistung man für die westliche Welt, Westeuropa und die Bundesrepublik bis zum Jahre 1980 erwarten kann.

Der spezifische Uranbedarf, (und zwar gerechnet als Natururan vor der Anreicherung) sowohl für die Erstausstattung als auch für die Nachladungen, hängt sehr stark vom Reaktortyp ab, wie Tab. 1 zeigt.

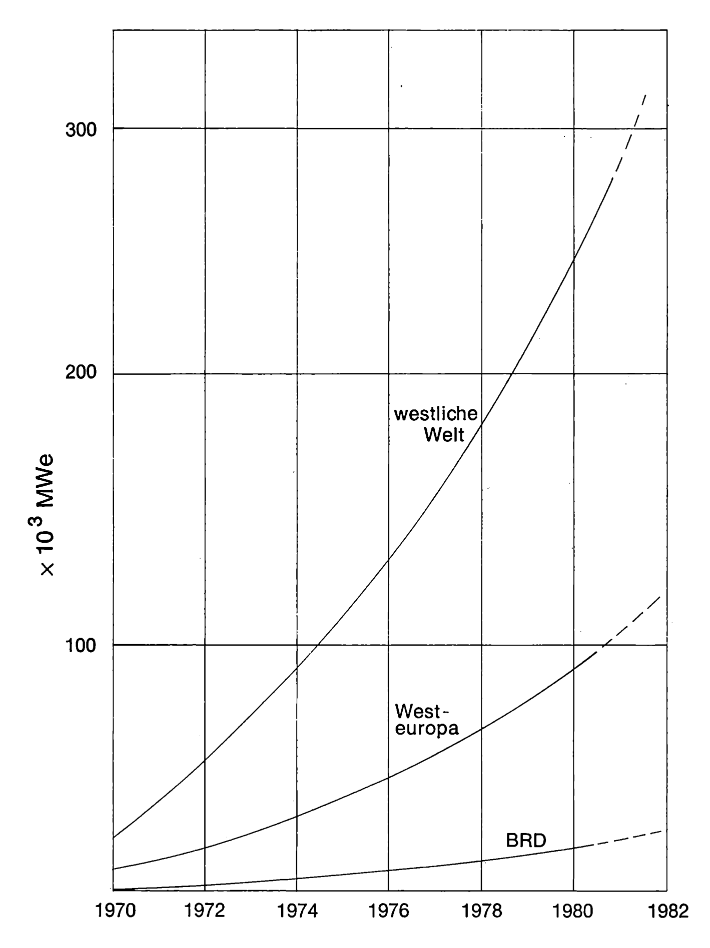


Abb. 2 Geschätzte Entwicklung der nuklearen Leistung. Dargestellt ist die betriebsbereite Kraftwerksleistung als Funktion der Zeit bis zum Jahre 1982.

Man ist sich heute darüber einig, daß der Leichtwasserreaktor (LWR = Druck- und Siedewasserreaktor) bis in die 80er Jahre der dominierende Reaktortyp sein wird. In der Bundesrepublik werden diese Reaktoren bis Ende der 70er Jahre mindestens 90 % der Kernenergie liefern. Der wichtigste der Reaktortypen, die die restlichen maximal 10 % ausmachen, dürfte der Hochtemperaturreaktor sein.

Tab. 1: Spezifischer Natururanbedarf

Reaktortyp	Erstausstattung t U_3O_8/MWe	Nachladung t U_3O_8/MWe · Jahr
Magnox (gasgekühlter, graphit-moderierter Reaktor mit Natururan)	1,3	0,3
FGR (fortgeschrittener, gasgekühlter Reaktor anger. Uran)	0,8	0,2
SWR (Siedewasserreaktor anger. Uran)	0,6	0,15
DWR (Druckwasserreaktor anger. Uran)	0,5	0,16
Druckschwerwasserreaktor (Natururan)	0,3	0,13

In den angegebenen Werten ist Uran- und Plutoniumrückführung nicht berücksichtigt.

Der in Abb. 3 wiedergegebenen Schätzung des Uranbedarfs für die westliche Welt und die Bundesrepublik liegt daher der für Siedewasser- und Druckwasserreaktoren spezifische Uranbedarf zugrunde. In der Bedarfskurve für Westeuropa wurden die britischen und französischen Magnoxreaktoren berücksichtigt.

Uranbedarf 1980

Insgesamt wird der (von 1970) bis 1980 kumulierte Uranbedarf in der westlichen Welt rund 400 000 t U_3O_8 betragen. Die Versorgung der Kernreaktoren in Westeuropa wird etwa 120 000 t U_3O_8 erfordern, während in der Bundesrepublik im gleichen Zeitraum etwa 27 000 t U_3O_8 benötigt werden.

Alle diese Annahmen gelten unter der Voraussetzung, daß der gesamte Uranbedarf bis 1980 aus Uranerzkonzentrat gedeckt werden muß. Bei vollständiger Rückführung des wiederaufgearbeiteten Urans bzw. Plutoniums aus ausgebrannten Brennelementen könnte man im Jahre 1980 bis zu 20 % an Uranerzkonzentrat einsparen. Da es jedoch schwierig ist, den genauen Umfang der Uran- und insbesondere der Plutonium-Rückführung in Leichtwasserreaktoren heute schon verläßlich abzuschätzen, wurde diese Rückführung bei unseren Bedarfsschätzungen nicht berücksichtigt.

1.2 Weltvorräte an Kernbrennstoffen

Uranvorräte der Welt

Infolge verstärkter Prospektions- und Explorationsbemühungen sowie technischer Verbesserungen der dafür angewandten Verfahren konnte man während der vergangenen zwei Jahrzehnte einen immer besseren Überblick über den Umfang der Welturanvorräte gewinnen. Die starke Verringerung des Uranbedarfs Anfang der 60er Jahre und die damit verbundene Abnahme der Uranproduktion führte zu einer spürbaren Verringerung der

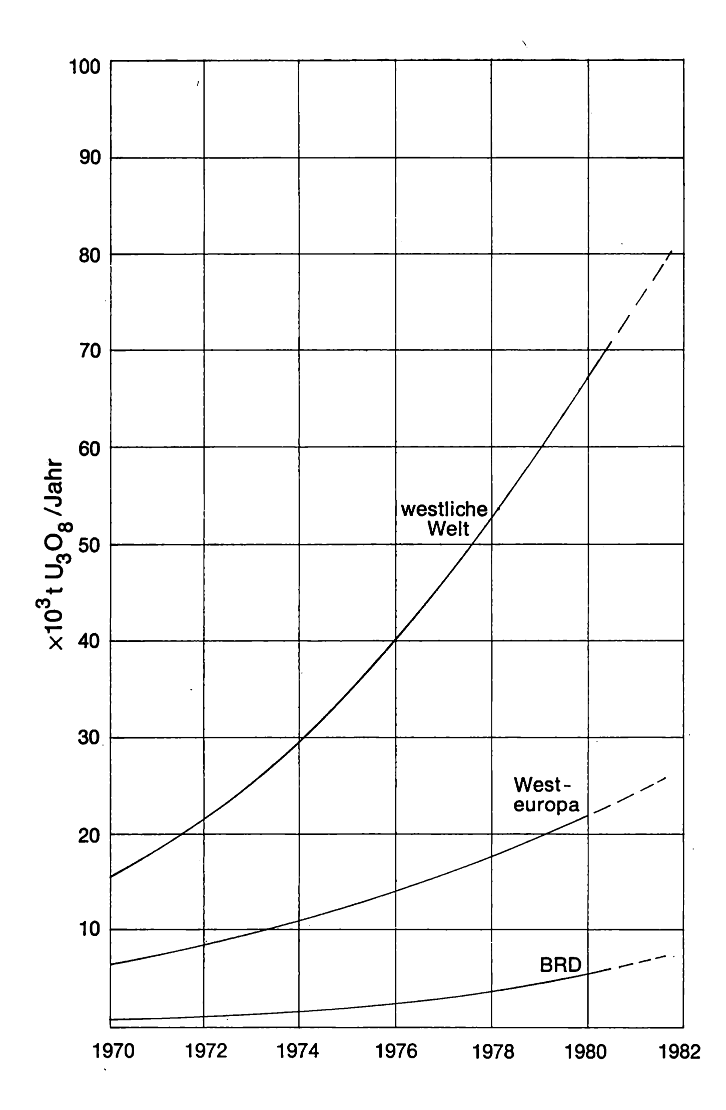


Abb. 3 Geschätzter jährlicher Bedarf an Natururan. Die Angabe erfolgt nicht wie zu erwarten in t Uranelement, sondern, wie beim Erzhandel üblich, in t U_3O_8. Um auf t U-Element umzurechnen, muß man etwa 15 % von den angegebenen Werten abziehen.

Prospektions- und Explorationstätigkeit. Da sie inzwischen infolge des gestiegenen Uranbedarfs wieder aufgelebt ist, wird man in Zukunft wieder mit einer Zunahme der nachgewiesenen Uranreserven rechnen können.

Seit Ende der 50er Jahre führt die European Nuclear Energy Agency (ENEA), seit 1968 zusammen mit der International Atomic Energy Agency (IAEA), in regelmäßigen Abständen Untersuchungen über Vorräte und Bedarf an Uran und Thorium in der Welt durch. Interessant ist in Tab. 2 eine Gegenüberstellung von Schätzungen der Jahre 1967 und 1970.

In dem Ende 1967 herausgegebenen Bericht wurden die geschätzten Uranvorräte in drei Preiskategorien eingeteilt, wobei man jede Kategorie noch einmal in „ziemlich sichere" und „geschätzte zusätzliche" Vorräte unterteilte.

Die Zuverlässigkeit der Schätzungen nimmt erfahrungsgemäß von der untersten zur höheren Preiskategorie stark ab, da es

Tab. 2: Geschätzte Uranvorräte der westlichen Welt (1967 u. 1970) (in 1.000 t U_3O_8)

Preiskategorie		unter 10 \$/lb U_3O_8 gewinnbar		zu 10–15 \$/lb U_3O_8 gewinnbar		zu 15–30 \$/lb U_3O_8 gewinnbar	
		ART DER VORRÄTE					
Land		ziemlich sichere	geschätzte	ziemlich sichere	geschätzte	ziemlich sichere	geschätzte
Kanada	1967	180	260	120	155	90	270
	1970	210	210	120	155	–	–
USA	1967	165*	320	135	180	180	400
	1970	225*	460**	125	270	–	–
Südafrika	1967	185	13	60	32	50	65
	1970	180	13	60	32	–	–
Australien	1967	10	3	3	1	1	–
	1970	20	124	8	6	–	–
Frankreich	1967	40	18	5	9	–	–
	1970	40	23	8	14	–	–
Sonstige	1967	55	51	377	123	214	535
			(Schweden	320	(Schweden	135	180)
						(Spanien	225)
	1970	85	88	359	123	–	–
			(Schweden	320)			
westliche Welt	1967	635	665	700	500	535	1.270
gesamt	1970	760	918	680	600		

* Uran als Nebenprodukt der Phosphat- und Kupfergewinnung (1967: 110.000 t, 1970: 80.000 t) nicht berücksichtigt.

** Weitere 80.000 t in noch unerschlossenen Gebieten

aufgrund ausreichender preisgünstiger Vorräte bisher noch keine Explorationen auf Uranvorkommen der höheren Preiskategorien gab, so daß die Informationsdichte in diesem Bereich gering ist. Aus diesem Grund kann auch der Umfang der Vorräte in höheren Preisgruppen um den Faktor 5-10 oder sogar mehr unterschätzt sein.

Der Ende 1970 erschienene neue Bericht der ENEA/IAEA läßt erkennen, daß der Umfang der nachgewiesenen Uranvorräte in der westlichen Welt weiter zugenommen hat. Demnach belaufen sich die („ziemlich sicheren") Uranreserven in der Preiskategorie unter 10 $/lb U_3O_8 auf 760 000 t U_3O_8 (840 000 sh tn[1]). Der Umfang der kürzlich bekannt gewordenen Uranfunde in Australien ist wegen ungenügender Explorationsarbeiten noch nicht zu übersehen. Diese Reserven wurden daher in Höhe der bisher etwa bekannten 100 000 t U_3O_8 als „geschätzte zusätzliche" Vorräte aufgenommen.

Gegenüber den 1967 geschätzten 635 000 t U_3O_8 und unter Berücksichtigung des inzwischen erfolgten Uranabbaues ergibt sich damit in den letzten 3 Jahren eine Erhöhung der nachgewiesenen Vorräte um etwa 175 000 t U_3O_8 (ohne Rossing- und Rabbit-Lake-Vorkommen). Die wichtigsten Neuentdeckungen wurden in Australien, Kanada, Gabun, Niger, Südwestafrika, den USA und der Zentralafrikanischen Republik gemacht.

Ausreichende Uranreserven bis 1985

Vergleicht man diese Angaben mit dem geschätzten, bis 1980 kumulierten Uranbedarf in der westlichen Welt, so sieht man, daß die bereits heute nachgewiesenen Uranreserven eine ausreichende Versorgung mit Kernbrennstoff bis mindestens Mitte der 80er Jahre gewährleisten.

1.3 Gewinnung von Uranerzkonzentrat

1.3.1 Abbau und Aufbereitung von Uranerz

Wirtschaftliche Uranvorkommen

Heute betrachtet man eine Lagerstätte, aus der Uran als Hauptprodukt gewonnen werden soll, im allgemeinen nur dann als wirtschaftlich abbauwürdig, wenn der Urangehalt über 0,1 Gew.% beträgt. Ist Uran jedoch ein Nebenprodukt, wie beispielsweise bei der Goldförderung in Südafrika oder der Gewinnung von Ölschiefern und Phosphaten, so ist der Abbau selbst bei geringeren Urangehalten noch wirtschaftlich.

Die mittleren Gehalte der heute bekannten Lagerstätten weisen je nach dem Land, in dem sie liegen, charakteristische Unterschiede auf. So verhalten sich die mittleren Gehalte der Lager der Hauptproduzenten USA, Kanada und Südafrika wie 10:5:1. Sieht man einmal von den jüngsten, noch nicht zu übersehenden Uranfunden Australiens ab, so haben die USA mit ca. 5 lb[2])

---

[1]) 1 sh tn (short ton) = 907,2 kg
[2]) 1 lb (pound) = 453,6 g

U_3O_8 pro sh tn Erz (= 0,25 %) die Lagerstätten mit dem höchsten mittleren Urangehalt in der westlichen Welt.

Prospektion

Der erste Schritt zur Urangewinnung ist die Prospektion, die Suche nach Häufungen von uranhaltigem Erz. Die Prospektion geht heute fast immer von bekannten geologischen Strukturen aus. Auch bei der Prospektion in relativ unbekannten Gebieten ist die geologische Grundinformation meist der erste Ausgangspunkt.

Exploration

Die Exploration dient anschließend der genaueren Erforschung des gefundenen Vorkommens, damit über einen möglichen Abbau entschieden werden kann. Prospektion und Exploration arbeiten heute mit stark verfeinerten Meßmethoden. Ausgangsbasis für die Messungen ist die Erdoberfläche oder, unter Einschaltung von Flugzeugen und Hubschraubern, der Luftraum.

Die geologischen Gegebenheiten und die örtliche Ausdehnung der Lagerstätte entscheiden über die wirtschaftliche Abbaumethode. Tagebau bis zu einer Tiefe von ca. 120 m wird heute dabei als technisch und wirtschaftlich sinnvoll angesehen.

Konzentrierung der Erze

Da der Transport des Uranerzes wegen des gewöhnlich geringen Urangehaltes im allgemeinen nicht wirtschaftlich ist, ist man bemüht, direkt am Abbauort ein Konzentrat mit einem ausreichend hohen Metallgehalt herzustellen. Dazu wird das geförderte Erz in Aufbereitungsanlagen zunächst physikalischen Anreicherungsverfahren unterworfen, bevor das Uran anschließend durch Anwendung geeigneter chemischer Prozesse weiter konzentriert wird.

Bei allen Verfahren werden auf dem Wege vom Uranerz zum Konzentrat vier Phasen unterschieden:

- Die mechanische Behandlung des Erzes,
- die Lösung des Urans,
- die selektive Rückgewinnung des Urans aus den uranhaltigen Lösungen,
- die Endbehandlung des Produkts.

Je nach der Art des Lösevorganges unterscheidet man ein „saures Verfahren" und ein „alkalisches Verfahren".

Konzentrierungsverfahren

Das „saure Verfahren" wird am häufigsten angewandt, da es die Uranextraktion aus siliziumhaltigen Uranerzen ermöglicht, und zwar mit einem größeren Wirkungsgrad als mit dem „alkalischen Verfahren". Nachdem das Erz gewaschen, zerstoßen und durch Mahlen auf eine genügend kleine Korngröße gebracht wurde, damit die Lösungsflüssigkeit mit maximalem Wirkungsgrad angreifen kann, wird es zur Lösung des Urans mit Schwefelsäure behandelt. Es bildet sich dabei lösliches Uranylsulfat ($UO_2 SO_4$).

Hat man die uranhaltige Schwefelsäurelösung durch Filtrieren vom festen Rückstand getrennt, so erfolgt die Rückgewinnung des Urans mit Hilfe von Ionenaustauschern oder durch Lösungsmittel. Aus der so erhaltenen, gereinigten und konzentrierten uranhaltigen Lösung wird das Uran durch Zugabe von Magnesia,

Natron oder Ammoniak ausgefällt. Die dabei erhaltenen Niederschläge von Magnesiumuranat, Natriumuranat oder Ammoniumuranat werden eingedickt, gefiltert, gewaschen, getrocknet und konditioniert. Dieses Uranerzkonzentrat, das im allgemeinen mehr als 70 % Uran enthält, ist international unter der Bezeichnung

yellow cake

„yellow cake" bekannt und stellt das Endprodukt der Aufbereitungsanlagen dar.

Das „alkalische Verfahren" wird zur Behandlung von Mineralien benutzt, die nennenswerte Mengen von säurelöslichen Metalloxiden enthalten, die in alkalischem Milieu nicht löslich sind. In diese Kategorie gehören vor allem die Erze mit hohem Kalkspatgehalt.

Nach der mechanischen Konditionierung wird das Erz mit einer Natriumkarbonat/-bikarbonatlösung behandelt, wobei das Uran als Natriumuranylkarbonat in Lösung geht. Da diese Karbonatlösungen selektiv das Uran aus dem Erz herauslösen, ist eine weitere selektive Rückgewinnung mit Ionenaustausch oder Lösungsmittel, wie beim „sauren Verfahren" nicht erforderlich. Es genügt, die uranhaltige Karbonatlösung durch Abfiltrieren vom festen Rückstand zu trennen und das Uran anschließend durch direkte Zugabe von Ätznatron auszufällen. Das anfallende Natriumuranat wird, wie bereits beschrieben, nach einer abschließenden Behandlung als Uranerzkonzentrat („yellow cake") geliefert.

1.3.2 Produktionskapazitäten

Entscheidend für eine jederzeit ausreichende Uranversorgung sind nicht allein die nachgewiesenen Uranreserven, sondern vor allem der rechtzeitige Ausbau der Produktionskapazitäten.

Bereits im Jahre 1959 erreichte die Uranproduktion der westlichen Welt einen Höchstwert von über 40 000 t U_3O_8. Bis 1966 wurde sie jedoch infolge der starken Abnahme des Uranbedarfs auf weniger als die Hälfte gedrosselt. 1969 betrug sie nach Angaben des ENEA/IAEA-Berichtes rund 21 000 t U_3O_8. Bis 1973 erwartet man eine Ausweitung dieser Kapazität auf etwa 34 500 t U_3O_8, bis 1975 sogar rund 46 000 t U_3O_8 (vgl. Tab. 3).

Uranproduktion der westlichen Welt

Der Anteil der USA an der Gesamtproduktion der westlichen Welt betrug 1959 etwa 40 % und machte später gleichbleibend etwa 50 % aus. Dieser Prozentsatz dürfte auch in den kommenden Jahren erhalten bleiben.

Kanada war zunächst mit etwa 35 % an der Weltproduktion beteiligt, hatte jedoch am stärksten unter den Produktionseinschränkungen der 60er Jahre zu leiden und liefert heute etwa noch 20 % der Weltproduktion. Wie man aus Tab. 3 ersieht, erwartet man bis 1975 eine überproportionale Zunahme der kanadischen Uranproduktion.

Der Produktionsanteil Südafrikas, des drittgrößten Uranproduzenten der westlichen Welt, betrug gleichbleibend etwa 15-18 %.

Tab. 3: Uranerzkonzentrat-Produktion in der westlichen Welt (in 1000 t U_3O_8)

Land	Produktion				voraussichtliche Produktionskapazität	
	1959	1963	1966	1969	1973	1975
USA	15.8	13.3	8.9	10.5	17	21
Kanada	14.4	7.6	3.5	4.1	5	12
Südafrika	5.8	4.1	3.0	3.6	5.5	5.5
Frankreich *)	1.1	1.9	1.9	2.0	4.5	5
Australien	1.0	1.0	–	0.3	1.5	1.5
Sonstige	2.1	0.1	–	0.3	1	1
Gesamt	40.2	28.0	17.3	20.8	34.5	46

*) einschließlich ehem. franz. Kolonien

Da Uran in Südafrika im allgemeinen als Nebenprodukt der Goldproduktion gewonnen wird, wird seine Produktionsrate im wesentlichen durch die Entwicklung der Goldproduktion bestimmt und kann deshalb nicht beliebig gesteigert werden.

Frankreich ist seit Ende der 50er Jahre durch die systematische Steigerung der Uranproduktion im eigenen Land sowie in den ehemals französischen Kolonien zum viertgrößten Uranproduzenten der westlichen Welt geworden. Der Produktionsanteil von derzeit etwa 10 % wird, vor allem durch Ausbau der afrikanischen Kapazitäten, in den kommenden Jahren noch weiter vergrößert.

Die Uranproduktion Australiens, die zunächst bei etwa 1000 t U_3O_8 gelegen hatte, kam in der zweiten Hälfte der 60er Jahre wegen mangelnder Nachfrage nahezu völlig zum Erliegen. In den kommenden Jahren wird, gestützt auf die großen Erzfunde mit vergleichsweise geringen Gewinnungskosten, mit einer Wiederaufnahme der Produktion gerechnet.

Eine Anpassung der Produktion an den weiter steigenden Bedarf nach 1975 dürfte sich wahrscheinlich ohne allzu große Schwierigkeiten vollziehen. Bestimmend dafür ist die schon heute erkennbare Konzentration im Uranbergbau, die insbesondere durch die zunehmende Aktivität der großen Ölgesellschaften gekennzeichnet wird. Darüber hinaus bilden die in der westlichen Welt, insbesondere den USA und Kanada, angelegten großen Regierungsvorräte eine zusätzliche Bedarfssicherung.

1.4 Konversion von Uranerzkonzentrat zu Uranhexafluorid

UF_6 für alle Anreicherungsverfahren

Man kann heute sagen, daß zur Erzeugung der Kernenergie bis Anfang der 80er Jahre in der westlichen Welt in zunehmendem

Maße Reaktoren eingesetzt werden, die mit angereichertem Uran betrieben werden müssen. Die heute für eine wirtschaftliche Erzeugung von angereichertem Uran verwendeten oder in Entwicklung befindlichen Verfahren (vgl. Kapitel 2), die den Massenunterschied zwischen den beiden in natürlichem Uran vorkommenden Isotopen U-235 und U-238 zur Isotopentrennung ausnutzen, benötigen als Ausgangsstoff gasförmiges Uranhexafluorid (UF_6). Das UF_6 ist die einzige bekannte Uranverbindung, die schon bei 56° C gasförmig wird.

Zur Erzeugung von UF_6 aus Uranerzkonzentrat (sog. Konversion) werden heute zwei einander ähnliche Verfahren angewandt, die beide aus folgenden drei Teilschritten bestehen:

- Reduktion des 6-wertigen Urans im Konzentrat zu 4-wertigem Urandioxid (UO_2) mit Hilfe von Wasserstoff;
- Hydrofluorierung des UO_2 zu Urantetrafluorid (UF_4) mit Hilfe von Fluorwasserstoff (HF);
- Fluorierung des UF_4 zu UF_6 durch Fluor (F_2).

Beide Verfahren unterscheiden sich durch die unterschiedliche Reinigung des Urans. Beim sogenannten „nassen Verfahren" wird das Uranerzkonzentrat (U_3O_8) in Salpetersäure (HNO_3) gelöst. Mit Hilfe einer Gegenstromextraktion unter Verwendung von Tributylphosphat (TBP) in Kerosin werden die Verunreinigungen abgetrennt. Nach der dann folgenden Denitrierung des gereinigten Uranylnitrats (UNH) zu UO_3 erfolgt die Bildung des UF_6 nach den oben genannten Verfahrensschritten.

Das „nasse Verfahren" wurde zuerst von der amerikanischen Atomenergiebehörde (USAEC) entwickelt und wird heute in den Konversionsanlagen der UKAEA in England, der COMURHEX in Frankreich, der Eldorado Nuclear Ltd. in Kanada und der Kerr McGee Corp. in USA angewandt.

Das „trockene Verfahren", das von Allied Chemical in USA entwickelt und bisher allein angewandt wird, beginnt mit der Zerkleinerung (Konditionierung) des Uranerzkonzentrates. An diese Konditionierung schließen sich die drei genannten Verfahrensschritte zur UF_6-Herstellung an. Dieses unreine UF_6 wird anschließend zur Endreinigung einer fraktionierten Destillation unterworfen.

Fluorierungsverfahren

Beide Verfahren haben Vor- und Nachteile. Beim „trockenen Verfahren" bildet die notwendige Reinigung des UF_6 durch fraktionierte Destillation einen schwierigen und recht aufwendigen Verfahrensschritt, liefert jedoch sehr reines UF_6. Beim „nassen Verfahren" dagegen erfordert die im Prinzip einfachere Extraktionsreinigung als Ausgangsmaterial Uranerzkonzentrat mit relativ hoher Reinheit, da einige der Verunreinigungen beim Extraktionsprozeß nur unvollkommen abgetrennt werden. Das UF_6 ist weniger rein als das beim „trockenen Verfahren" gewonnene.

2. Urananreicherung

K. P. Messer

2.1 Bedarf an angereichertem Uran

Der im nächsten Jahrzehnt zu erwartende Bedarf an Urantrennarbeit ergibt sich für die Bundesrepublik Deutschland und die meisten anderen europäischen Länder weitgehend zwangsläufig aus den Annahmen über die installierte nukleare elektrische Leistung in den einzelnen Ländern, da man heute mit Sicherheit sagen kann, daß in dieser Zeitspanne der LWR überwiegend eingesetzt werden wird. Neuere Reaktortypen, wie schnelle Brüter oder Hochtemperaturreaktoren, werden in dieser Zeit mit Sicherheit nicht in erheblichem Umfang zur gesamten nuklearen Leistung beitragen.

Eine Ausnahme hiervon bilden die Länder England und Frankreich. Beide Länder arbeiten zur Zeit noch überwiegend mit Reaktoren, die Natururan benötigen. Für Frankreich ist eine Abschätzung der in den nächsten Jahren benötigten Trennarbeit erst seit kurzem möglich, da sich die französische Atomenergiebehörde (CEA) erst jetzt für die LWR-Linie entschieden hat. Für England gibt es Schätzungen für den Bedarf an Urantrennarbeit in den nächsten Jahren, die dem zunehmenden Einsatz von mit angereichertem Uran betriebenen Reaktoren Rechnung tragen.

Trennarbeitseinheit TAE

Zur Berechnung des Trennarbeitsbedarfs der nächsten Jahre, der sich aus dem Einsatz von LWR's ergibt, ist zu beachten, daß die Anzahl von kg Trennarbeitseinheiten (kg TAE: Diese Einheiten stellen ein Maß für den zur Erzeugung von angereichertem Uran zu leistenden Aufwand dar, und zwar unabhängig vom jeweiligen gewünschten Anreicherungsgrad) pro installiertem nuklearen MWe im Laufe der Jahre geringer werden. Dies beruht u. a. auf Verbesserungen in der Kernauslegung, dem Wiedereinsatz von zurückgewonnenem Uran mit höherer Restanreicherung als Natururan, dem Wiedereinsatz von Plutonium in LWR's, mit dem etwa ab Mitte der 70er Jahre zu rechnen ist, sowie auf steigenden Abbrandwerten und besserer Neutronenökonomie.

Trennarbeitsbedarf

Stellt man für die europäischen Länder aus den bekannten Daten im Bau befindlicher oder geplanter Kernreaktoren sowie aus den Schätzungen und Angaben öffentlicher Stellen und aus Veröffentlichungen anderer Art die bis Beginn der 80er Jahre zu

erwartende installierte nukleare Leistung zusammen, so kann man hieraus den in der Abb. 4 angegebenen jährlichen Trennarbeitsbedarf auftragen. (Vgl. hiermit Abb. 2)

Man ersieht aus dieser Abbildung, daß Europa im Jahre 1980 einen Bedarf von fast 10 000 t TAE haben wird. Da bis heute der gesamte europäische Trennarbeitsbedarf von der amerikanischen Atomenergiebehörde (USAEC) gedeckt wird (die kleineren Anla-

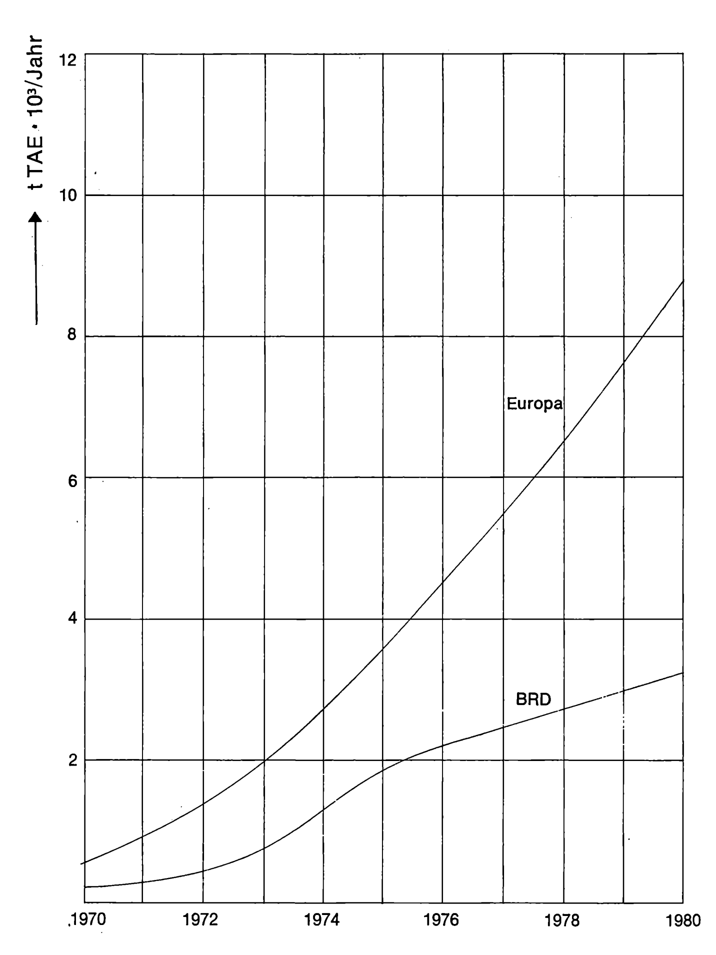


Abb. 4 Trennarbeitsbedarf Europas (ohne Frankreich) und der Bundesrepublik Deutschland bis zum Jahre 1980. TAE bedeutet „Trennarbeitseinheit".

gen Englands und Frankreichs wurden aus militärischen Gründen errichtet und sind für eine kommerzielle Anreicherung von Uran für LWR's ungeeignet), ist es nur allzu verständlich, daß man schon seit einiger Zeit in Europa die Frage diskutiert, ab wann und in welchem Maßstab und mit welchem Verfahren der Bedarf an Trennarbeit durch eine europäische Anreicherungsanlage gestillt werden soll.

Diese Überlegungen werden durchaus nicht nur unter dem Gesichtspunkt der Versorgungssicherheit und Unabhängigkeit von einer Versorgungsquelle angestellt, stellt doch bei dem heutigen Preis der Trennarbeitseinheit von rund 100,— DM pro kg TAE der genannte 1980er Bedarf ein finanzielles Volumen von knapp 1 Mrd. DM dar.

2.2 Methoden der Urananreicherung

Zur Anreicherung von Uran ist eine Vielzahl von Trennverfahren erdacht und teilweise entwickelt worden. Allen diesen Verfahren ist gemeinsam, daß das zu trennende Material in gasförmigem Zustand vorliegen muß. Man benutzt also Uranhexafluorid (UF_6). Wegen der Aggressivität und Toxizität dieser Uranverbindung werden bei deren Handhabung in großem Maßstab eine Reihe besonderer technologischer Probleme aufgeworfen.

Trennverfahren

Von den bekannten Verfahren zur Isotopentrennung haben bis heute nur drei praktische Bedeutung erlangt:

- das Gasdiffusionsverfahren,
- das Gaszentrifugenverfahren und
- das Trenndüsenverfahren.

Schematische Darstellungen des Trennprinzips dieser drei Verfahren enthält die Abb. 5.

2.2.1 Diffusion

Beim Diffusionsverfahren, das in allen heute in Betrieb befindlichen Anreicherungsanlagen angewandt wird, läßt man UF_6 aus Kammern höheren Drucks (1) durch poröse Wände (Diaphragmen) (2) in Kammern niederen Druckes (3) strömen. Durch die etwas höhere Diffusionsgeschwindigkeit der leichteren Uranmoleküle U-235 erhält man auf der Niederdruckseite (3) eine geringfügige Konzentrationsverschiebung zugunsten dieses leichteren Isotops, während das schwerere Isotop U-238 sich auf der Seite höheren Druckes (1) anreichert. Da jedoch dieser Trenneffekt nur sehr klein ist, müssen zur Herstellung eines Anreicherungsgrades, wie er z. B. von LWR's benötigt wird, mehrere tausend solcher Diffusionsvorgänge in sogenannten Kaskaden hintereinander geschaltet werden. Durch die hierbei ständig notwendige Kompression des Verfahrensgases erfordert die Urananreicherung nach dem Diffusionsverfahren einen hohen Energieaufwand. Der Kosten-

Kaskaden

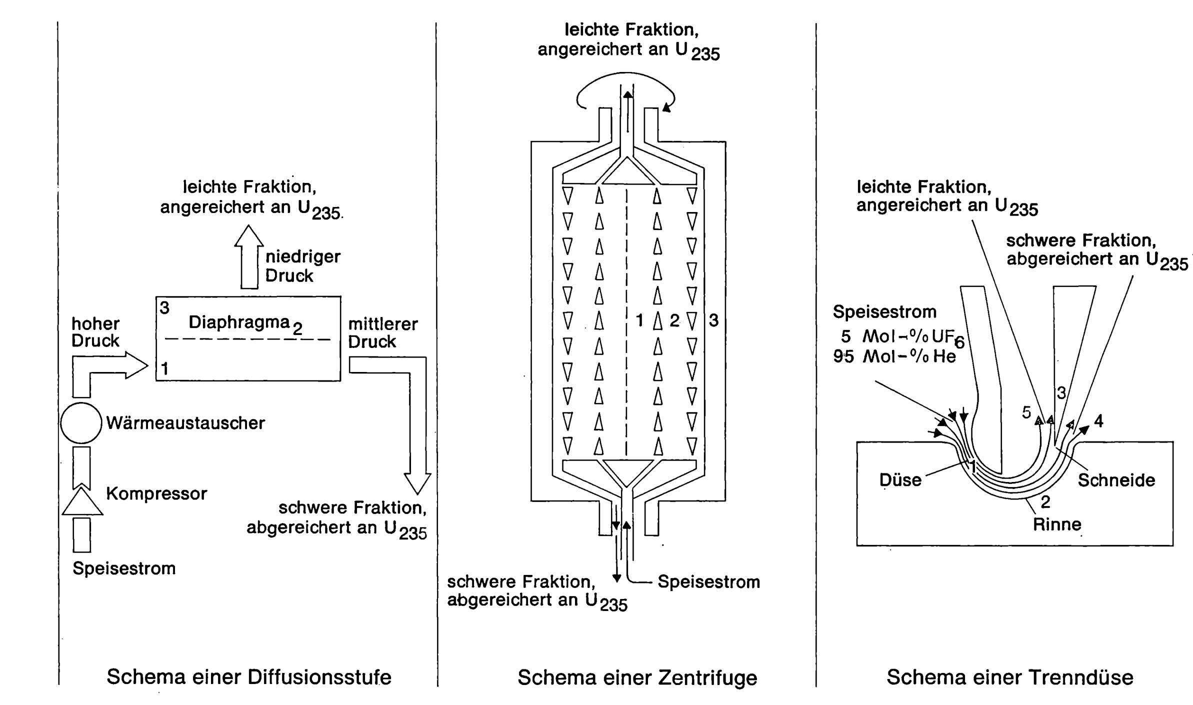


Abb. 5 Schematische Darstellung der wichtigsten Isotopen-Trennverfahren. Die Erklärung der Ziffern erfolgt im Text.

aufwand der amerikanischen Diffusionsanlagen für elektrische Energie beträgt rund die Hälfte des heute gültigen Preises für die Trennarbeitseinheit.

2.2.2 Zentrifuge

Schon in den 30er Jahren konnte man experimentell nachweisen, daß es in einer schnell rotierenden Zentrifuge durch das darin herrschende hohe Schwerefeld zu einer Trennung von Isotopen kommt, d. h. daß die leichteren Isotope des in der Zentrifuge befindlichen Gases sich in Achsennähe (1) der Zentrifuge anreichern, während die schwereren Isotope sich in der Nähe des Rotormantels (2) anreichern.

Dieser Effekt kann noch durch Erzeugung eines Gegenstromes in der Zentrifuge, der thermisch oder mechanisch angeregt werden kann, verstärkt werden.

Da beim Zentrifugenverfahren die Trennleistung, d. h. die Anzahl von Trennarbeitseinheiten pro Zeiteinheit, zumindest theoretisch mit der 4. Potenz der Umfangsgeschwindigkeit des Rotormantels (3) ansteigt, versucht man durch Verwendung hochfester Werkstoffe bei großen Umdrehungszahlen der Zentrifugen zu Trennleistungen zu kommen, die eine wirtschaftliche Verwendung dieser Methode gestatten.

Zwar ist der Trenneffekt einer Zentrifuge größer als der einer Diffusionszelle, jedoch muß man auch bei diesem Verfahren eine große Anzahl von einzelnen Trennelementen zur Erzeugung von Kernbrennstoff in Kaskaden zusammenschalten. Diese Kaskaden enthalten zwar wegen des größeren Trenneffektes der Zentrifuge eine sehr viel geringere Stufenzahl als beim Diffusionsverfahren (zur Anreicherung auf ca. 4 % U-235 weniger als 100 Stufen gegenüber mehr als 1000 bei der Diffusion), jedoch ist die Trennleistung des einzelnen Trennelementes so gering (zwischen 1 und 10 kg TAE/a), daß zur Erzielung der notwendigen hohen Durchsätze viele Zentrifugen parallel geschaltet werden müssen. Der Aufwand an elektrischer Energie ist, verglichen mit dem Diffusionsverfahren, sehr viel geringer (etwa 1/10 des Energieaufwandes des Diffusionsverfahrens), jedoch muß noch erhebliche Entwicklungsarbeit geleistet werden, bis es möglich ist, in Zentrifugen-Großanlagen angereichertes Uran zu Preisen zu liefern, wie sie die großen US-Trennanlagen ermöglichen.

2.2.3 Trenndüse

Beim sogenannten Trenndüsenverfahren wird eine Mischung von etwa 5 Mol % Uranhexafluorid und 95 Mol % Helium durch eine schlitzförmige Düse (1) expandiert, wobei während der Expansion der Gasstrahl durch entsprechende Ausbildung der Trenndüse (Rinne 2) abgelenkt wird. Durch diese Ablenkung des Gasstrahles wirken auf die Uranisotope unterschiedlicher Masse, ähnlich wie

bei der Zentrifuge, unterschiedliche Kräfte und es kommt zu einer teilweisen Trennung der Uranisotope, wobei sich die schwere Fraktion näher an der die Ablenkung hervorrufenden gekrümmten Düsenwandung (2) ansammelt. Unmittelbar nach Austritt aus der Düse wird durch ein Abschälmesser (3) der Gasstrahl in eine schwere (4) und eine leichte Fraktion (5) aufgeteilt; beide Fraktionen werden getrennt abgepumpt.

Die Beimischung von Helium dient zur Steigerung der Strömungsgeschwindigkeit und führt zu einer beträchtlichen Vergrößerung des Trenneffektes.

Auch bei diesem Trennprozeß ist der Trenneffekt eines einzelnen Trennelementes so klein, daß eine Vielzahl von Trennelementen in Kaskaden hintereinander geschaltet werden müssen. (Der Trenneffekt liegt zwischen dem des Diffusionsverfahrens und dem der Zentrifuge.) Nach Durchgang durch die verschiedenen Anreicherungsstufen wird das Helium vom übrigen Verfahrensgas abgetrennt und kann dann wieder im Prozeß eingesetzt werden.

Der Vorteil dieses Verfahrens liegt in relativ geringen Investitionskosten, wohingegen die zur ständigen Wiederverdichtung des Verfahrensgases zwischen den einzelnen Stufen notwendigen Kompressoren noch mehr elektrische Energie verbrauchen als beim Diffusionsverfahren. Hauptziel der zur Zeit laufenden Entwicklungsarbeiten an diesem Verfahren ist die Reduzierung dieses sehr hohen spezifischen Stromverbrauches auf geringere Werte.

2.3 Möglichkeiten der Deckung des deutschen und europäischen Trennarbeitsbedarfs und wirtschaftliche Konsequenzen

2.3.1 Versorgung durch vorhandene Diffusionsanlagen

Die Diffusionsanlagen von England und Frankreich, die eine Größe von je etwa 500 t TAE/a haben, wurden für militärische Zwecke erbaut und sind, verglichen mit den großen US-Anlagen, unwirtschaftlich.

US-Anlagen

Auch die großen Diffusionsanlagen der USAEC in Oak Ridge, Portsmouth und Paducah wurden aus militärischen Gründen errichtet, können jedoch aufgrund ihrer Größe – die drei Anlagen haben zusammen eine Kapazität von 17 000 t TAE/a – heute fast ausschließlich für die wirtschaftliche Versorgung von Forschungs- und Leistungsreaktoren eingesetzt werden. Etwa im Jahre 1978 wird allein der Trennarbeitsbedarf der USA rund 17 000 t TAE/a betragen. Der Bedarf der gesamten westlichen Welt wird zu diesem Zeitpunkt etwa bei 25 000 t TAE/a liegen oder anders ausgedrückt, schon etwa im Jahre 1975/76 würde der Gesamtbedarf der westlichen Welt an Trennarbeit die heute verfügbare

Kapazität der USAEC übersteigen. (Hierbei ist die von der USAEC beabsichtigte Vorproduktion außer acht gelassen.)

Aus diesem Grunde wurde von der USAEC beschlossen, durch zwei Verbesserungsprogramme, das sogenannte „Kaskadenverbesserungsprogramm“ und das „Kaskadenleistungserhöhungsprogramm“, die Kapazität der drei amerikanischen Anlagen erheblich zu steigern. Durch diese beiden Verbesserungsprogramme sowie durch eine gewisse Vorproduktion in den kommenden Jahren gelingt es, den Trennarbeitsbedarf der gesamten westlichen Welt bis etwa 1980/81 durch die USAEC zu decken. Voraussetzung hierfür ist allerdings ein rechtzeitiges Anlaufen der erwähnten Programme. Aufgrund der neuesten Verlautbarungen der USAEC ist jedoch nicht mehr damit zu rechnen, daß diese im vollen Umfange und zur geplanten Zeit durchgeführt werden können. Man muß deshalb annehmen, daß etwa 1979/80 der kumulierte Trennarbeitsbedarf der westlichen Welt die kumulierte Produktion der USAEC übersteigt.

Lohnanreicherung

Der Bezug von angereichertem Uran geschieht heute fast ausschließlich nach dem Lohnanreicherungsverfahren, das seit dem 1. 1. 1969 von der USAEC eingeführt wurde. Hierbei wird die Anreicherungsdienstleistung zu kommerziellen Bedingungen und aufgrund von privatrechtlichen Verträgen dem Kunden zur Verfügung gestellt. Der Kunde stellt soviel natürliches UF_6 bei, wie zur Erzeugung der von ihm gewünschten Menge angereicherten Uranhexafluorids mit dem gewünschten Anreicherungsgrad notwendig ist. Die zur Anreicherung benötigten Trennarbeitseinheiten werden ihm dann in Rechnung gestellt, wobei der Preis (ab September 1971) $ 32,00/kg TAE beträgt.

Der Betreiber eines Leistungsreaktors kann je nach Wunsch und Verwendungszweck die Lohnanreicherungsdienste der USAEC unter einem „Requirement Contract“ oder unter einem „Firm Quantity Contract“ in Anspruch nehmen.

Im Gegensatz zum letzteren Vertragstyp, bei dem der Kunde lediglich eine bestimmte Menge von angereichertem UF_6, die zu einem bestimmten Termin zu liefern ist, bezieht, hat der Reaktorbetreiber unter einem „Requirement Contract“ die Möglichkeit, eine oder mehrere Reaktoranlagen mit angereichertem Uran für einen bestimmten Zeitraum ganz oder teilweise zu versorgen. Der Kunde und die USAEC einigen sich unter diesem Vertrag auf eine Höchstmenge an U-235, bis zu deren Erreichen die USAEC sich zur Leistung der Lohnanreicherungsdienste verpflichtet. Ein derartiger Vertrag kann über einen Zeitraum bis zu 30 Jahren abgeschlossen werden, wobei allerdings Voraussetzung ist, daß ein Staatsabkommen zwischen dem Land des Kunden und der USAEC besteht. (Für die EURATOM-Länder hat der entsprechende Vertrag eine Laufzeit bis 1995, womit auch Lohnanreicherungsverträge durch Reaktorbetreiber in der BRD heute nur bis 1995 geschlossen werden können.)

2.3.2 Versorgung nach dem Zentrifugenverfahren, trilaterale Zusammenarbeit England – Deutschland – Niederlande auf dem Zentrifugengebiet

Die seit einigen Jahren, insbesondere in den Niederlanden, England und der Bundesrepublik vorangetriebene Entwicklung der Isotopentrennung durch Gasultrazentrifugen ist heute so weit fortgeschritten, daß man sicher ist, eine wirtschaftliche Urananreicherung erreichen zu können.

Zu diesem Ergebnis kamen auch von FORATOM [3]) und EURATOM [4]) ausgearbeitete Studien, wobei jedoch deren Aussagewert nicht allzu groß war, da, durch die Geheimhaltung technischer Details bedingt, die Ausgangsparameter nur sehr ungenau sein konnten. Man kann allerdings davon ausgehen, daß dieses Verfahren im Vergleich zum Diffusionsverfahren höhere Investitions- und vor allem wegen des niedrigen Stromverbrauches geringere Betriebskosten erwarten läßt.

Weiterhin dürfte, da die Diffusionstechnik in den USA seit Kriegsende immer weiter entwickelt wurde, während die Zentrifugentechnik erst seit einigen Jahren ernsthaft vorangetrieben wird, letztere noch ein erheblich größeres Entwicklungspotential als die Diffusionstechnik besitzen.

Der Stand der eigenen Entwicklungen und diese Hoffnung auf Entwicklungsfortschritte in den nächsten Jahren haben England, die Niederlande und die Bundesrepublik veranlaßt, zusammenzuarbeiten. Diese in dem trilateralen Vertrag von Almelo (März 1970) niedergelegte Zusammenarbeit beinhaltet gemeinsame Entwicklung von Zentrifugen, gemeinsamen Bau von Anreicherungsanlagen und gemeinsamen Betrieb dieser Anlagen. Zu diesem Zweck wurden zwei internationale Gesellschaften gegründet, die eine für die Entwicklung von Zentrifugen und für die Planung und den Bau von Anreicherungsanlagen (Centec m.b.H., Bensberg), die andere für Errichtung und Betrieb solcher Anreicherungsanlagen sowie für die mit dem Betrieb zusammenhängende Forschung und Entwicklung (Urenco Ltd., London).

Centec und Urenco

Im Rahmen der trilateralen Zusammenarbeit, jedoch noch nach nationaler Planung, werden zunächst Pilotanlagen in England (Capenhurst) und in den Niederlanden (Almelo) errichtet. Die niederländische Anlage in Almelo soll noch 1971 in Betrieb gehen, während die deutsche Anlage, die ebenfalls in Almelo gebaut wird, etwa Anfang 1973 den Betrieb aufnehmen soll. Auch die englische Anlage soll etwa 1972 ihren Betrieb aufnehmen. Alle Anlagen zusammen werden eine Kapazität von unter 100 t TAE/a haben, jedoch sieht das weitere Programm einen gemeinsamen Aufbau von insgesamt wenigstens 350 t TAE/a fest vor.

---

[3]) Europäisches Atomforum

[4]) Europäische Atomgemeinschaft

Sollte der Betrieb dieser Anlagen eine wirtschaftliche Anreicherung mit Zentrifugenanlagen in größerem Maßstab erwarten lassen, – in den beteiligten Ländern zweifelt man hieran nicht – so ist damit zu rechnen, daß etwa ab Mitte der 70er Jahre in Schritten von 500 – 1000 t TAE/a große Anreicherungskapazitäten nach diesem Verfahren in Europa errichtet werden.

Bei der oben geschilderten Zunahme des europäischen Trennarbeitsbedarfs kann man davon ausgehen, daß, auch wenn ab Mitte der 70er Jahre große Zentrifugenanlagen gebaut werden, der gesamte Zuwachs des Trennarbeitsbedarfs nicht ausschließlich durch **ein** Verfahren gedeckt werden kann. Man muß vielmehr annehmen, daß Europa zumindest bis in die 80er Jahre hinein auch für andere Verfahren und andere Länder einen Markt für den Verkauf von Trennarbeit darstellt.

2.3.3 Versorgung durch das Trenndüsenverfahren

Eine weitere Möglichkeit zur Versorgung der deutschen bzw. europäischen Leistungsreaktoren stellt das Trenndüsenverfahren dar.

Schon seit Ende 1967 arbeitet in der GfK (Gesellschaft für Kernforschung) in Karlsruhe eine kleine zehnstufige Laboranlage nach diesem Verfahren und zeigt, daß man gasdynamisch stabil eine mehrstufige Trenndüsenanlage mit einem Gemisch von Helium und UF_6 betreiben kann.

Nach diesem erfolgreichen Betrieb der Laboranlage wurde eine Trennstufe gebaut, die eine Trennleistung von 1,7 t TAE/a hat und wie sie in Zusammenwirken mit mehreren hundert solcher Stufen in einer Trennanlage von etwa 500 t TAE/a zur Erzeugung von angereichertem Uran für Leistungsreaktoren verwendet werden könnte. Diese Stufe befindet sich zur Zeit im Erprobungsstadium und soll demnächst für die ersten Trennversuche eingesetzt werden.

Anfang 1970 beschlossen die GfK, die bisher die Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Trenndüse allein getragen hat, und die Steinkohle-Elektrizität-AG, STEAG, Essen, in einem Zusammenarbeitsvertrag gemeinsam weitere Entwicklung, Industrialisierung und praktische Anwendung dieses Verfahrens. Es ist geplant, bis Ende 1973 alle Vorbedingungen geschaffen zu haben, um mit der Errichtung einer wirtschaftlich arbeitenden Anlage von etwa 500 bis 1000 t TAE pro Jahr beginnen zu können.

Wie bereits oben geschildert, müssen die zur Zeit laufenden Entwicklungsarbeiten insbesondere auf eine Verminderung des Strombedarfs dieses Verfahrens bzw. eine Erhöhung des Trennfaktors hinauslaufen. Heute werden von GfK und STEAG die Herstellkosten der Trennarbeitseinheit für eine Trenndüsenanlage je nach den Annahmen für Stromkosten zwischen ca. $ 35 und $ 60 pro kg TAE geschätzt, beziehungsweise lassen sich solche

Werte unter Zugrundelegung gleicher Kapitalkosten wie bei den anderen Verfahren errechnen.

2.3.4 Europäische Diffusionsanlage

US-Technik

Die amerikanische Atomenergiebehörde hat in mehreren Veröffentlichungen die Kosten, die sich bei Neubau von Diffusionsanlagen verschiedener Größe in den USA ergeben würden, abgeschätzt. Hieraus und aus den Schätzungen für die Betriebskosten wurden von FORATOM und EURATOM Schätzungen für die Kosten der Trennarbeit bei Aufbau einer europäischen Diffusionsanlage ausreichender Kapazität (2500 bzw. 5000 – 8000 t TAE/a) abgegeben. Hiernach muß man mit Erzeugungspreisen für das kg Trennarbeitseinheit von etwa $ 27 bis $ 37 rechnen. Die Rechnungen, die zu Erzeugungspreisen unter $ 30 führen, basieren auf Kapitalkosten, die nach heutigen Gesichtspunkten unrealistisch sind.

Französische Technik

Da in England und Frankreich eigene Erfahrungen mit Diffusionsanlagen vorliegen, wurde auch die Frage geprüft, inwieweit eine europäische Diffusionsanlage ohne das Know-how der USAEC errichtet werden könnte. Unabhängig davon, daß hierzu noch erhebliche Mittel für weitere Entwicklungsarbeiten (Entwicklung größerer Diffusionsstufen) benötigt werden, führen diese Überlegungen zu Kosten für die Herstellung der Trennarbeitseinheit, die mindestens so hoch liegen wie die oben für Diffusionsanlagen nach amerikanischem Know-how angegebenen.

Man kann jedoch allgemein sagen, daß unter Ausnutzung des in England und Frankreich bzw. Amerika vorhandenen Diffusions-Know-how eine europäische Diffusionsanreicherungsanlage gebaut werden könnte, die einmal ausreichende Kapazität hätte, um die für die Diffusionsanlagen charakteristische erhebliche Kostendegression mit steigender Kapazität auszunutzen, jedoch andererseits wegen der hohen europäischen Stromkosten die Trennarbeit nur zu Kosten herstellen könnte, die über dem derzeitigen Trennarbeitspreis der USAEC liegen würden.

Der in jüngster Zeit vor allem von Frankreich propagierte Bau einer europäischen Diffusionsanlage mit französischer Technologie müßte, soll die Anlage etwa 1979/80 in Betrieb gehen, etwa 1974 beschlossen werden. Eine vom französischen CEA in Auftrag gegebene Studie soll die Grundlagen für diese Entscheidung liefern.

3. Brennelemente

Der energieerzeugende Vorgang in einem Kernreaktor ist der physikalische Prozeß der Kernspaltung. Er ist also vom Prinzip her deutlich unterschieden von dem chemischen Prozeß der Oxydation fossiler Brennstoffe, der zu seinem Ablaufen der Zufuhr von Luft bedarf.

Kernbrennstoff – fossiler Brennstoff

Während sich fossiler Brennstoff bei der Verbrennung stofflich verändert und die entstehenden Oxydationsprodukte und Rückstände (Gase bzw. Asche) laufend entfernt werden müssen, reichert sich der Kernbrennstoff während seiner Einsatzzeit infolge der ständig ablaufenden Kernspaltung mit den hochradioaktiven Kerntrümmern, den Spaltprodukten, an. Diesen Spaltprodukten muß man den Übertritt in das Kühlmittel verwehren. Der Kernbrennstoff ist deshalb stets mit einer gasdicht aufgebrachten Hülle umgeben.

Hülle

Beiden Brennstoffen, fossilem wie nuklearem, ist jedoch gemein, daß sie sich erschöpfen und nachgefüllt werden müssen. Der Kernbrennstoff muß deshalb in auswechselbaren Einheiten eingesetzt werden, die man „Brennelemente" nennt. Ist der Brennstoff in den Elementen erschöpft, d. h. ist der Spaltstoffanteil in ihnen unter eine bestimmte Grenze abgesunken, so wird das betreffende Element aus dem Reaktor herausgezogen und durch ein neues ersetzt.

Brennelemente

Energieinhalt von nuklearem Brennstoff

Eine typische Eigenschaft des Kernbrennstoffs ist seine hohe Energiekonzentration. Aus 1 kg (eine Handvoll) schwach angereichertem Uranoxid läßt sich eine Energiemenge entziehen, die der Verbrennung von 60 000 kg hochwertiger Steinkohle entspricht. Brennelemente verbleiben also sehr lange im Reaktor; bei einem Kernkraftwerk z. B. 4 – 5 Jahre. Die ganze Zeit über muß das Brennelement den Bedingungen des Reaktorbetriebes standhalten, also besonders der intensiven Strahlung und dem chemischen Angriff durch die Spaltprodukte und durch das heiße Kühlmittel, das den Reaktorkern mit hoher Geschwindigkeit durchströmt. Entwicklung und Fertigung von Brennelementen erfordern also einen hohen Stand der Technik.

Es gibt verschiedene Reaktortypen, die man am besten nach dem zur Kühlung verwendeten Medium einteilt. Diese Reaktoren können Leistungsreaktoren sein, also elektrische Energie erzeu-

gen, oder aber zu Versuchs- und Testzwecken dienen (siehe hierzu Tab. 4).

Gaskühlung

Eine Gruppe von Reaktoren ist gasgekühlt. Hierzu gehören die Graphit-moderierten Reaktoren, wie sie in England und auch Frankreich zur Energieerzeugung eingesetzt werden (sogenannte Magnox-Reaktoren). Der erste der englischen Reaktoren dieser Art ist der Calder Hall Reaktor, der im Jahre 1956 seinen Betrieb aufnahm. Den Kern solcher Reaktoren bildet ein großer Graphitblock, der im Inneren Kanäle für die Aufnahme der Brennelemente enthält. Das Kühlmittel ist CO_2. Die Temperatur, mit der das Kühlgas den Reaktorkern nach Durchströmen verläßt, beträgt 350 – 400° C.

Fortgeschrittene gasgekühlte Reaktoren

Der fortgeschrittene, gasgekühlte Reaktor FGR (oder AGR) erzeugt heißeres Gas (Gasaustrittstemperatur ca. 550° C, Kühlmittel CO_2). Eine weitere Steigerung bis zu Gasaustrittstemperaturen von 650 bis 800° C und darüber ist mit dem Hochtempe-

Tab. 4: Kernkraftwerke in der BRD

Name	Standort	Reaktortyp	Kühlmittel	Leistung (el) MW	Kritikalität (bzw. Inbetriebnahme)
VAK	Kahl/Main	SWR	H_2O	15	1960
MZFR	Karlsruhe	D_2O	D_2O	57	(1966)
KRB	Gundremmingen	SWR	H_2O	237	1966
AVR	Jülich	HTR	He	15	1966
KWL	Lingen/Ems	SWR	H_2O	237	1968
KWO	Obrigheim	DWR	H_2O	345	(1969)
HDR	Großwelzheim/Main	HDR	H_2O	25	(1970)
KKN	Niederaichbach/ Isar	D_2O-Gas	CO_2	100	(1971)
KNK	Karlsruhe	ZH-Na	Na	20	(1972)
KWW	Würgassen/Weser	SWR	H_2O	640	(1972)
KWS	Stade/Elbe	DWR	H_2O	630	(1972)
Biblis A	Biblis/Rhein	DWR	H_2O	1145	(1974)
KKB	Brunsbüttel/Elbe	SWR	H_2O	740	(1973/74)
KKP I	Philippsburg/Rhein	SWR	H_2O	864	(1974)
GKN	Neckarwestheim/ Neckar	DWR	H_2O	800	(1975)
THTR	Schmehausen/Lippe	HTR	He	300	(1976)
KKP II	Philippsburg/Rhein	SWR	H_2O	860	(1976)
KK I	Ohu/Isar	SWR	H_2O	860	(1976)
Biblis B	Biblis/Rhein	DWR	H_2O	1230	(1976)
KKK	Krümmel	SWR	H_2O	1316	(1977)

raturreaktor (HTR) möglich. Hier ist der Graphit bereits so heiß, daß man nicht mehr mit CO_2 kühlen kann, weil dies mit dem heißen Graphit reagieren würde. Man kühlt Hochtemperaturreaktoren mit Helium.

Hochtemperaturreaktoren

Auch Reaktoren, die anstelle von Graphit Schwerwasser als Moderator verwenden, können gasgekühlte Reaktoren sein. So z. B. der in Niederaichbach an der Isar im Bau befindliche Reaktor KKN (Kernkraftwerk Niederaichbach), der mit CO_2 gekühlt wird.

Wasserkühlung

Leichtwasserreaktoren

Eine weitere wichtige Reaktorgruppe sind die wassergekühlten Reaktoren. Hierzu gehören die LWR-Kraftwerke mit Druckwasser- (DWR) und Siedewasserreaktoren (SWR), die heute wohl die wichtigsten Leistungsreaktortypen darstellen. Wassergekühlt sind aber auch viele Forschungsreaktoren, besonders die vom Schwimmbadreaktortyp.

Als Kühlmittel dient hier meist leichtes Wasser H_2O. Daneben wird aber auch in geringerem Maßstab schweres Wasser D_2O zur Kühlung eingesetzt.

Schwerwasserreaktoren

Für Reaktoren mit Schwerwasserkühlung sei der MZFR (Mehrzweckforschungsreaktor 57 MWe) in Karlsruhe angeführt.

Natriumkühlung

Bei Reaktoren mit sehr hoher Energiedichte im Kern, besonders also bei den sogenannten „Schnellen Brütern", benutzt man als sehr wirkungsvolles Wärmeübertragungsmittel meist flüssiges Natrium zur Kühlung. Ein schneller Brutreaktor existiert in der Bundesrepublik noch nicht, geplant ist der SNR-300 (schneller natriumgekühlter Reaktor) mit einem Standort in Kalkar am Niederrhein. Ein natriumgekühlter kleiner Leistungsreaktor ist auch der Reaktor KNK (Kompakte natriumgekühlte Kernreaktoranlage) in Karlsruhe, der in der ersten Stufe noch thermisch arbeitet. Durch Einbau eines anderen Kerns wird daraus ab 1974 ein schneller Versuchsreaktor.

Zu den obenangeführten Reaktortypen mit ihren typischen Kühlmitteln gehört gewöhnlich auch ein typischer Werkstoff der Hülle und auch ein typischer Kernbrennstoff.

Uranmetall

Gasgekühlte Reaktoren vom Typ Calder Hall benutzen Uranmetall mit natürlicher Isotopenzusammensetzung als Brennstoff. Die Hülle besteht aus schwachlegiertem Magnesium (Magnox = Magnesium non oxidizing).

Uranoxid

Der fortgeschrittene gasgekühlte Reaktor FGR kann kein Uranmetall mehr benutzen, da dieses bei 660° C seine Struktur ändert. Man benutzt UO_2 mit schwacher Anreicherung als Brennstoff und anstelle der niedrig schmelzenden Magnesiumhüllen solche aus austenitischem Stahl.

Gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren benutzen Graphit als Hüllmaterial. Weil dieses meist nicht gasdicht ist, umgibt man den in Form kleiner Brennstoffkörnchen (Durchmesser etwa $^1/_2$ mm) vorliegenden Brennstoff mit einer praktisch gasdichten Hülle aus pyrolytisch abgeschiedenem Kohlenstoff. Man nennt solche

Beschichtete Partikel Brennstoffteilchen „beschichtete Partikeln" (coated particles); sie bestehen meist aus hochangereichertem UO_2 oder aus Mischungen UO_2-ThO_2; auch UC_2 bzw. UC_2-ThC_2 wird für solche Elemente verwendet. Diese beschichteten Teilchen werden in einer Matrix aus Graphit eingesetzt.

Wassergekühlte Leistungsreaktoren benutzen als Brennstoff Uranoxid mit Anreicherungen bis etwa 3 % U-235, selten darüber. Die Schwerwasserreaktoren kommen meist mit UO_2 natürlicher Isotopenzusammensetzung aus. Die Hülle besteht bei all diesen Reaktoren ganz überwiegend aus einer Zirkonlegierung (Zircaloy).

Forschungs- und Testreaktoren, insbesondere solche vom Schwimmbadtyp, kühlen ihre Elemente meist mit Wasser, dessen Temperatur normalerweise 100° C nicht übersteigt. Man benutzt hier Aluminium als Hüllmaterial. Der Brennstoff ist eine Uran-Aluminium-Legierung mit etwa 20 – 25 Gew.-% hochangereichertem Uran bzw. ein Pulvergemisch aus UAl_4 und Al.

Uran-Plutonium-Oxid Natriumgekühlte Reaktoren schließlich müssen auf rostfreien Stahl als Hüllmaterial übergehen. Der Brennstoff ist angereichertes UO_2 wie beim KNK-Reaktor oder aber ein PuO_2-UO_2-Gemisch wie beim 2. Kern des KNK-Reaktors und den schnellen Brutreaktoren. Anstelle von oxidischem Brennstoff soll später auch karbidischer, nitridischer oder karbonitridischer verwendet werden.

3.1 Elementaufbau

J. Höchel, G. Matz, H. Schweickert, H. Weidinger

Brennelemente können ein ganz verschiedenes Aussehen haben, das von konstruktiven Gegebenheiten, Größe der Öffnung im Deckel, Art der Lademaschine usw. abhängt. In den meisten Fällen sind es lange und schlanke Gebilde von etwa 4 – 5 m Länge bei einem großen LWR-Kernkraftwerk und bis zu 8 m Länge bei einem gasgekühlten Kraftwerk des Typs Calder Hall. Im letzteren Fall ist diese große Länge jedoch aus einzelnen Einheiten von etwa 1 m Länge zusammengesetzt. Das gleiche gilt für den fortgeschrittenen gasgekühlten Reaktor FGR.

Elementformen Wird Uranmetall als Brennstoff benutzt, so besteht das Element aus einer einzigen Stange, deren Durchmesser meist 25 mm beträgt bei Längen von 30 – 100 cm (Abb. 6). UO_2 kann dagegen nicht mehr als Stange eingesetzt werden, da es gesintert werden muß und nach diesem Verfahren nur Tabletten begrenzter Größe

„Pellets" hergestellt werden können. Diese Tabletten (sogenannte „Pellets") mit Abmessungen von 8 – 15 mm Durchmesser und 10 – 15 mm Länge müssen in Hüllrohre als Tablettensäule eingeschweißt werden, die zu einem Bündel vereinigt werden. Oxidische

Stabbündel Elemente sind also stets Stabbündel, bei denen eine unterschiedliche Anzahl von Brennstäben zu einer Einheit zusammengesetzt

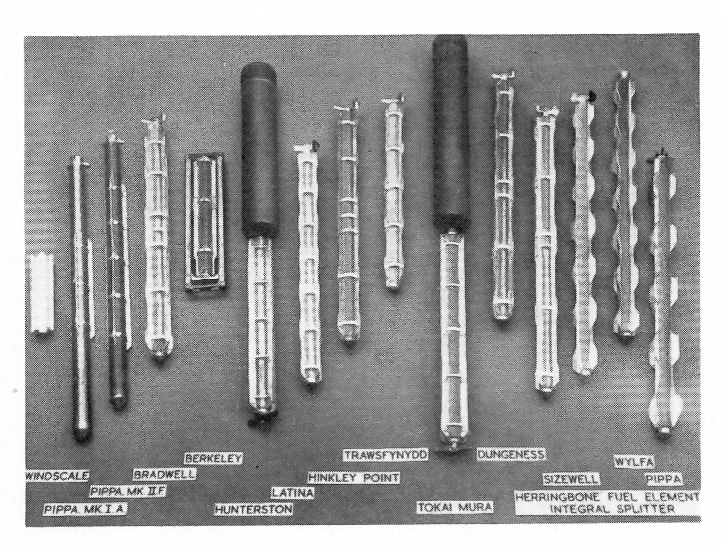


Abb. 6 Brennelemente für Magnox-Reaktoren in Großbritannien. Die verschiedenen dargestellten Elemente unterscheiden sich im wesentlichen nur in der Ausbildung der Magnox-Hülle mit dem z. T. recht komplizierten Rippenprofil. Im Innern befindet sich stets eine Natururanmetallstange von ca. 1 Zoll Durchmesser und verschiedener Länge. Mit „Pippa" ist der Calder-Hall-Reaktor gemeint (Länge dieses Elements ca. 1 m). Beim Hunterston- und Tokai-Mura-Reaktor (der letztere in Japan) sind auch die Graphitrohre dargestellt, in denen das Element aufgehängt ist. Die übrigen Elemente werden ohne Graphithülle eingesetzt (siehe auch Abb. 37).
Foto: BNFL, British Nuclear Fuels Ltd.

wird. Je nach Reaktortyp können solche Elemente bis zu einigen Hundert Stäbe enthalten (Abb.7).

Blöcke

Hochtemperaturreaktoren benutzen bei kleineren Leistungen stab- und bündelförmige Elemente, bei größeren jedoch Blöcke oder Kugeln. Blockförmige Elemente bestehen aus einem sechseckigen Graphitblock von etwa 1 m Höhe, der in Bohrungen den Brennstoff enthält, die zur Blockkante parallel verlaufen (Abb. 8).

Kugeln

Ein anderer Typ des Hochtemperaturreaktors ist der Kugelhaufenreaktor, der in der Bundesrepublik Deutschland entwickelt wurde. Der Kern solcher Reaktoren ist eine Kugelschüttung. Das Auswechseln erfolgt durch Abzug verbrauchter und Zugabe neuer kugelförmiger Brennelemente. Bei dem kürzlich beschlossenen Prototyp eines THTR-Reaktors (Thorium-Hochtemperatur-Reaktor) in Schmehausen bei Unna bilden etwa 6 – 700 000 Graphitkugeln mit je 6 cm Durchmesser den Kern.

Plattenbündel Einen weiteren Typ stellen die Elemente der Forschungs- und Testreaktoren dar (Abb. 9). Hier verwendet man gern ein Bündel dünner mit Aluminium umhüllter Platten, die sogenannten MTR-Elemente. Der Reaktor MTR (Materials Testing Reactor) war der erste Reaktor, der Elemente dieser Art benutzte.

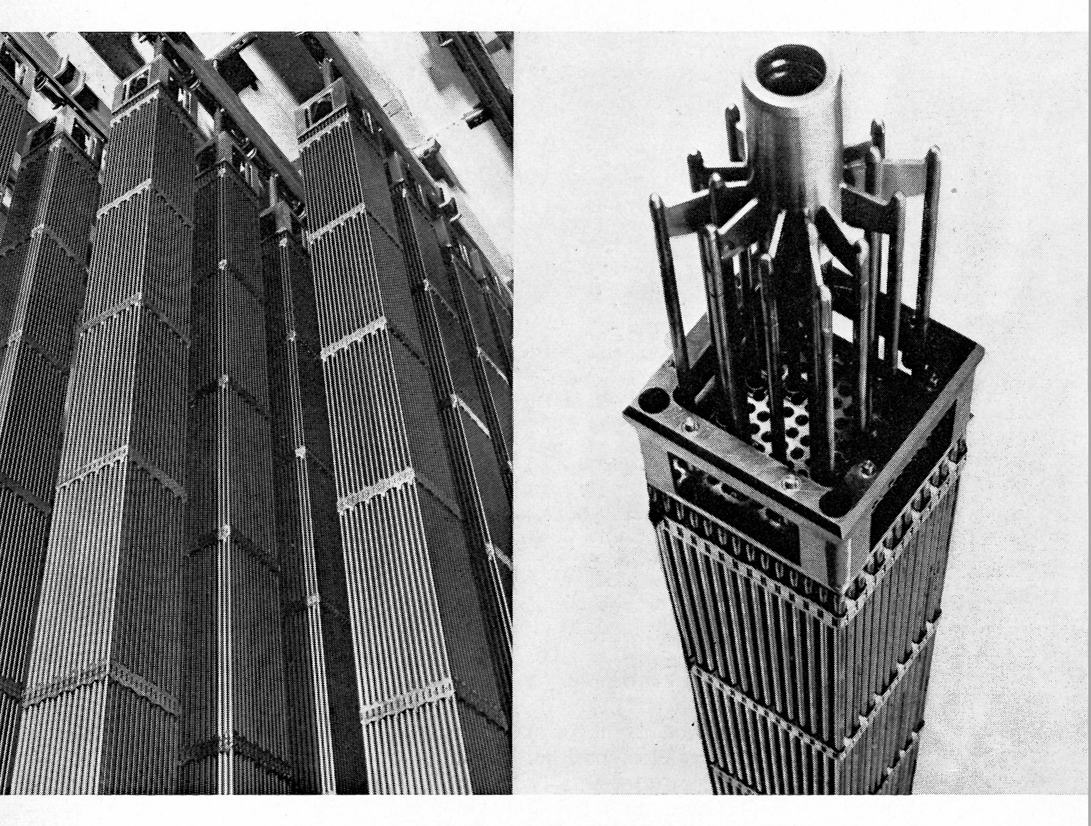


Abb. 7 Typische Elemente von Druckwasserreaktoren. Im rechten Teil sieht man die von oben in das Element eingreifenden Finger, die Neutronenabsorber enthalten. Sie dienen der Steuerung des Reaktors. Die Anzahl der Stäbe im Element variiert mit der Größe des Reaktors. Der Reaktor in Stade verwendet Elemente mit 15 x 15 Stäben und 20 Absorberfingern (linker Teil), der Reaktor in Obrigheim nur 14 x 14 Stäbe und 16 Finger. Der größere Reaktor Biblis-A schließlich hat 16 x 16 Stäbe im Element mit 20 Absorberfingern. Man erkennt außerdem deutlich die Abstandshalter.
Foto: RBG

Die Wärmeübertragung stellt ein wichtiges Problem beim Entwurf und der Konstruktion von Kernreaktoren dar. Pro Mengeneinheit Brennstoff wird eine möglichst große Wärmeübergangsfläche angestrebt. Bei den bündelförmigen Elementen (Stab- oder Plattenbündel) wird man auf möglichst dünne Stäbe und Platten übergehen. LWR-Reaktoren arbeiten mit Stabdurchmessern von etwa 10 – 15 mm. Brutreaktoren benutzen dünnere Stäbe von etwa 6 mm Durchmesser.

Eine Verbesserung der Wärmeabfuhr erreicht man auch mit Kühlrippen an den Hüllrohren. So benutzen die Magnox-Brenn-

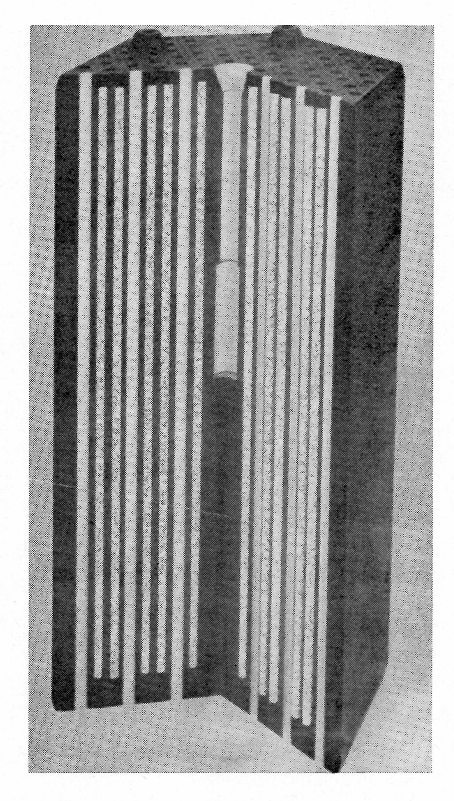


Abb. 8 Element für einen Hochtemperaturreaktor. Höhe des Graphitblocks etwa 1 m, Schlüsselweite des hexagonalen Elements zwischen 40 und 60 cm. Das zentrale Loch dient zur Handhabung beim Auswechseln, die hellen durchgehenden Kanäle zur Kühlgasführung. Der Brennstoff ist grau gepunktet angelegt.
Foto: Gulf General Atomic

elemente der gasgekühlten Reaktoren Hüllen mit komplizierten Rippenprofilen (Abb. 6).

In den folgenden Unterkapiteln wird näher auf die verschiedenen Brennelementformen eingegangen. Dabei werden vier Brennelementtypen unterschieden:



Abb. 9 Brennelemente für einen Forschungsreaktor (Petten, Niederlande). Der Brennstoff befindet sich in den etwa 1,5 mm dicken Platten, er ist allseits von Aluminium umgeben. Ein über das Plattenbündel gelegter Kamm sorgt für die Abstandshaltung.
Foto: NUKEM

Brennelementtyp	Reaktorkonzept
Stabbündel	Leicht- und Schwerwasserreaktoren vom Druck- oder Siedewassertyp. Schnelle Brutreaktoren.
Plattenbündel	Fortgeschrittene gasgekühlte Reaktoren. Forschungs- und Testreaktoren bzw. Schwimmbadreaktoren.
Stäbe	Gasgekühlte Reaktoren des Calder Hall Typs.
Kugeln und Blöcke	Hochtemperaturreaktoren.

3.1.1 Konstruktive Merkmale und besondere Anforderungen

Bevor auf konstruktive Merkmale und die besonderen Anforderungen der Brennelemente eingegangen wird, sollen einige oft verwendet Begriffe erläutert werden.

Abbrand

Der „Abbrand" ist ein Begriff, der das Maß für die nukleare Standzeit der Brennelemente im Reaktor darstellt. Der Abbrand wird gebräuchlicherweise in MWd/t (Megawatt Tage pro Tonne) oder bei Hochtemperaturreaktoren oft auch in % FIFA (fission of fissionable atoms) oder % FIMA (fission of metal atoms) definiert.

Der Abbrand kann sowohl durch den Verlust der Reaktivität (die Anzahl der spaltbaren Atome reicht nicht mehr aus, eine Kettenreaktion zu bewirken) als auch durch die Werkstoffbelastung begrenzt sein.

Spezifische Leistung

Die „spezifische Leistung" gilt als Maß für die Wärmeleistung pro Masseneinheit des Brennstoffs, die erzeugt und aus dem Reaktorkern abgeführt wird. Sie wird in W/g oder KW/kg Brennstoff definiert. Eine ähnliche Größe, die mehr das Volumen des Reaktorkerns beschreibt, ist definiert als Wärmeleistung pro Volumeneinheit des Kerns in KW/l. Hohe Werte für die spezifische Leistung weisen immer auf einen sehr kompakten Kern hin.

Stableistung

Die „Stableistung" ist ein Maß für die Größe der pro Längeneinheit des Brennstabes erreichbaren Wärmeleistung und ist definiert mit W/cm Stablänge. Dieser Begriff ist von besonderer Bedeutung für den Vergleich der thermischen Belastbarkeit bei unterschiedlichen Brennstabdurchmessern. Bei gleicher Brennstoffoberflächentemperatur entspricht z. B. der gleiche Wert der Stableistung auch bei verändertem Brennstoffdurchmesser einer konstanten Brennstoffzentraltemperatur.

Temperaturen

In diesem Zusammenhang soll auch kurz der Temperaturverlauf in einem Brennstab erläutert werden:

Durch die jeweilige Leistungsabgabe pro Flächeneinheit des Brennstabes und durch die Wärmeübergangszahl vom Hüllrohr zum Kühlmittel ist eine Temperatur der Hüllrohroberfläche gegeben. Proportional zur Leistungsabgabe bildet sich in Abhängigkeit von der Wärmeleitfähigkeit des Hüllwerkstoffes ein Tempe-

Tabelle 5

	Reaktortyp	Leichtwasser		Schwerwasser		Gas-Graphit			Schneller Brüter SNR	MTR
		SWR	DWR	Druck-kessel	Druck-röhren	Magnox	FGR	THTR		
Auslegung	Standort	Würgassen	Biblis-A	Atucha	Nieder-aichbach	Calder Hall	Entwurf	Schme-hausen	Kalkar	Geesthacht
	Kühlmittel	H_2O	H_2O	D_2O	CO_2	CO_2	CO_2	He	Na	H_2O
	Brennstoff	UO_2	UO_2	UO_2	UO_2	U-Metall	UO_2	besch. UO_2-Partikel	$UO_2 - PuO_2$	UAl_4–Al
	Stab- bzw. Platten-leistung (max.) W/cm	606	563	575	311	450	350	—	570	1.100
	Spez. Leistung kW/kg Brennstoff	22,1	34,7	28,7	7,4	2,4	9,5	105	170	2.140
	Mittl. Heizfl.-belastung W/cm²	51,3	57,1	54,4	24	18	34,2	9,8	150	24
	Abbrand (lokal max.) MWd/tU	44.000	50.000	7.000	11.600	3.000	18.000	140.000	85.000	325.000
	Hüll- bzw. Oberfl. Temp. (max.) °C	~ 350	~ 350	~ 324	~ 650	~ 400	~ 700	~ 580	~ 685	~ 64
	Brennstofftemp. (max.) °C	~ 2.400	~ 2.400	~ 2.750	~ 1.650	~ 600	~ 1.540	~ 1.250	~ 2.720	~ 65
	Kühlmitteldruck at.	72	158	115	60	7	40	40	4	1,7

Reaktortyp		Leichtwasser		Schwerwasser		Gas-Graphit			Schneller Brüter SNR	MTR
		SWR	DWR	Druck-kessel	Druck-röhren	Magnox	FGR	THTR		
Konstruktionsmerkmale	Brennelementform	Stabbündel	Stabbündel	Stabbündel	Stabbündel	Stäbe	Stabbündel	Kugeln	Stabbündel	Plattenbündel
	Stab- bzw. Plattenlänge mm	4.075	4.400	6.000	1.040 (6-mal)	1.030 (8-mal)	995	—	2.460	625
	Stab- bzw. Kugeldurchmesser mm	14,3	10,75	11,9	15	32,2 (ohne Rippen)	15,3 (ohne Rippen)	60	6	—
	Stab- bzw. Plattenzahl pro Element max.	49	236	36	19	1	36	—	169	23
	Stab- bzw. Plattenanordnung	quadr.	quadr.	rund	rund	—	rund	—	hexag.	parall.
	Abstandshalterung (AH) Art, Anzahl pro Element	AH 7	AH 9	AH 14	AH 3	—	AH 2	—	AH	Kämme an den Enden

raturgradient in der Hüllwand aus. Zwischen der Hülle und der Brennstofftablette besteht normalerweise ein Spalt, der mit Gas (Helium oder Spaltgase) gefüllt ist. Die geringe Wärmeleitfähigkeit dieser Gase bzw. der Kontaktwiderstand bei Anliegen der Tablettensäule führt zu einem steilen Temperaturgradienten im Spalt. Der Temperaturverlauf vom Brennstoffrand zur Stabmitte ist annähernd parabolisch und durch die sehr geringe Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes (für Oxid ca. 0,02 W/cm · sec °C) bestimmt. Die Zentraltemperatur bestimmt in der Regel die maximale Stableistung, da der Schmelzpunkt (bei Oxid z. B. ca. 2750° C) nicht überschritten werden soll.

Brennstabbündel

Der größte Teil der heute wirtschaftlich bedeutsamen Leistungsreaktoren verwendet Brennelemente, bei denen der Brennstoff stabförmig vorliegt. Hierzu wird der Brennstoff meist als Tablette („pellet"), seltener auch als einvibriertes Pulver, in Hüllrohre eingefüllt, die mit Endkappen dicht verschweißt werden. Eine bestimmte Anzahl solcher Stäbe wird zu einem Brennelementbündel zusammengefaßt. Das Bündel stellt in diesem Fall die kleinste Handhabungseinheit dar. Allerdings tendiert man heute dazu, diese Bündel so zu konstruieren, daß bei aufgetretenen Defekten auch einzelne Stäbe ersetzt werden können. Dazu ist aber eine nicht ganz einfache Auswechslungstechnik im Brennelementlagerbecken oder in Heißen Zellen erforderlich.

Die Abmessungen der Brennstäbe variieren mit dem Reaktortyp. Generell nimmt der Stabdurchmesser mit zunehmender Leistungsdichte ab (vgl. Tabelle 5), da wegen der schlechten Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs zu hohe Temperaturen in Stabmitte entstehen würden.

Die Länge der Brennelemente richtet sich ebenfalls nach dem Reaktorkonzept. Bei den Leichtwasserreaktoren ist die Länge mit der Höhe des Druckgefäßes verknüpft, das den Reaktorkern umschließt. Die Abmessungen des Druckgefäßes müssen aus Wirtschaftlichkeitsgründen möglichst kompakt gehalten werden. Andere Reaktorkonzepte, wie z. B. der mit Schwerwasser moderierte kanadische CANDU-Reaktor, verwenden bewußt relativ kurze Einheiten, die in waagerechter Position durch den Reaktor geschoben werden. Auf diese Weise wird ein kontinuierliches Nachladen des Kerns ermöglicht.

Der Abstand zwischen den Brennstäben eines Bündels wird durch die Forderungen der Reaktorphysik und der Kühlmittelführung bestimmt. Bei thermischen Reaktoren geht hier der Wunsch nach einem optimalen Moderator/Brennstoff-Verhältnis ein, da das Kühlmittel gleichzeitig als Moderator dient. Bei Schnellen Reaktoren bedeutet dagegen jedes Medium zwischen den Brennstäben eine „Aufweichung" des erwünschten „harten" Neutronen-Energie-Spektrums; man ist deshalb bestrebt, den Abstand zwischen den Brennstäben so klein wie möglich zu halten.

Die technische Lösung der Abstandshalterung der Brennstäbe zueinander im Brennelement muß sowohl wirtschaftliche wie sicherheitstechnische Gesichtspunkte berücksichtigen und auch hinsichtlich mechanischer Stabilität wie auch enger Toleranzen für die Maßhaltigkeit beträchtlichen Anforderungen gerecht werden. Als technische Verwirklichung findet man meist in bestimmten Abständen Gitter, die die Stäbe in ihrer Position fixieren. Eine besonders zuverlässige Abstandshalterung garantieren Rippen oder Drähte auf dem Hüllrohr der Stäbe.

Abstandshaltergitter

Einen Überblick über die wichtigsten Kenndaten der Auslegung und charakteristische konstruktive Merkmale von Stabbündel-Elementen, geordnet nach den Reaktortypen, vermittelt Tab. 5.

LWR-Elemente

Aus der Klasse der Wasserreaktoren haben heute wegen ihrer wirtschaftlichen Bedeutung zur billigen Stromerzeugung die beiden Reaktortypen „Siedewasserreaktor" (SWR)[5]) und „Druckwasserreaktor" (DWR)[6]) die weiteste Verbreitung in Kernkraftwerksanlagen gefunden. Beide verwenden natürliches (leichtes) Wasser gleichzeitig als Kühlmittel für die Wärmeabfuhr von den Brennelementen und als Moderator zum Abbremsen der bei der Uranspaltung freigesetzten Neutronen.

Beim Siedewasserreaktor ist der Systemdruck (meist 70 at) so festgelegt, daß das Wasser an den Brennelementen siedet und der so erzeugte Sattdampf (286° C bei 70 at) im Reaktordruckgefäß gesammelt und direkt der Turbine zugeführt wird. Im Gegensatz hierzu arbeitet der Druckwasserreaktor mit höheren Systemdrucken (bis zu 160 at), womit das Sieden bei einer Erwärmung des Wassers bis auf rd. 300° C an den Brennelementen im wesentlichen unterdrückt wird. Die Dampferzeugung erfolgt in einem nachgeschalteten Wärmeaustauscher, so daß dieser Reaktor grundsätzlich zwei getrennte Kühlkreisläufe aufweist.

Zircaloy-Hüllrohr

Die Brennelemente dieser beiden Reaktortypen haben einen im Prinzip ähnlichen, konstruktiv relativ einfachen Aufbau (Abb. 7 und 10.). In beiden Fällen besteht der Einzelstab aus einem nahtlos gezogenen Hüllrohr aus Zircaloy, in das eine Brennstoffsäule aus gesinterten UO_2-Tabletten eingefüllt ist. Zur besseren Wärmeübertragung von den Brennstofftabletten auf das Hüllrohr wird Helium als Füllgas verwendet. Die Hüllrohre werden oben und unten mittels gasdicht verschweißter Endstopfen verschlossen. Zum Auffangen des während des nuklearen Abbrandes entstehenden Spaltgases bleibt ein sogenannter Spaltgasraum im oberen Ende des Stabes frei von Brennstoff. Eine hierin eingebaute Spiralfeder hält den Brennstoff in seiner Position.

Spaltgasraum

Beim Brennstab für Siedewasserreaktoren wird die Wandstärke der Brennelementhülle grundsätzlich so dick gewählt, daß das Hüllrohr „freistehend" dem Systemdruck während des gesam-

---

[5]) Englisch: BWR „**B**oiling **W**ater **R**eactor"
[6]) Englisch: PWR „**P**ressurized **W**ater **R**eactor"



Abb. 10 Brennelement eines Siedewasserreaktors (KWL, Lingen). 6 x 6 = 36 Brennstäbe sind hier zum Brennelement zusammengefaßt. Abstandshalter sorgen für die Positionierung der Stäbe. Neuere Reaktoren, etwa KWW (Würgassen) besitzen 7 x 7 = 49 Brennstäbe/Element (siehe Abb. 35). Im Gegensatz zum Druckwasserreaktorelement erfolgt Steuerung durch Absorberbleche, die sich zwischen den Elementen bewegen.
Foto: AEG

ten Reaktoreinsatzes standhält. Eine solche Auslegung stößt beim Brennelement für Druckwasserreaktoren mit hohem Systemdruck auf gewisse Schwierigkeiten, weshalb man hier dazu übergegangen ist, das Füllgas mit einem Vordruck einzufüllen, der den Systemdruck teilweise kompensiert. Als weitere Maßnahmen sind z. Z. verschiedene Druckausgleichssysteme in der Diskussion, die für einen über die Abbrandzeit möglichst gleichmäßigen Druckverlauf im Innern des Brennstabes sorgen sollen.

Diese Brennstäbe werden zu Bündeln mit quadratischem Querschnitt zusammengesetzt; bei modernen Siedewasserreaktoren in einer 7 x 7-Stabanordnung; bei Druckwasserreaktoren werden größere Bündeleinheiten bevorzugt (etwa 14 x 14 Stäbe).

Die Fixierung der Brennstababstände erfolgt in beiden Fällen durch Abstandshalter, die jedoch für SWR- und DWR unterschiedliche Konstruktion besitzen.

Brennelementkasten

Beim Siedewasserelement wird über das durch die Abstandshalter zusammengehaltene Bündel ein Blechkasten (ebenfalls aus Zircaloy) geschoben, so daß die Strömungsführung des Kühlmittels für jedes Bündel getrennt vorgesehen ist. Dieser Kasten entfällt beim Druckwasserreaktorelement. Dort wird also eine Querströmung des Kühlmittels ausdrücklich zugelassen.
Zur weiteren Verbesserung des Wärmeübergangs vom Brennstab auf das Wasser dienen beim DWR-Element sog. „Verwirbelungsfahnen“ an den Abstandshaltern, die so in den Kühlmittelstrom entlang der Brennstäbe hineinragen, daß eine kräftige Strömungsturbulenz im Wasser erzeugt wird (siehe Abb. 32).

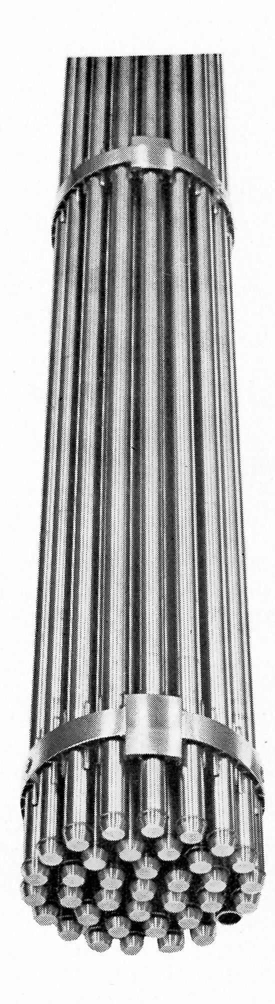
Beim Siedewasserreaktor werden jeweils vier Elemente zu einer Zelle zusammengefaßt, zwischen diesen Zellen bewegen sich die kreuzförmigen Blätter der Regelstäbe, die den Neutronenfluß zwischen den Brennelementen limitieren. Moderne Druckwasserreaktoren verwenden sog. Finger-Regelstäbe, wobei die Regelstäbe in Führungsrohre, die sich in freien Stabpositionen des Brennelementbündels befinden, eingeführt werden (in Abb. 7 sichtbar).

D_2O-Elemente

Natururaneinsatz

Außer den Leichtwasserreaktoren werden noch verschiedene Reaktorkonzepte mit schwerem Wasser D_2O als Moderator verwendet. Der grundsätzliche Vorteil dieser Reaktoren ist die Möglichkeit des Einsatzes von nicht angereichertem „Natururan“ als Brennstoff, was für viele Staaten wichtig ist, die sich nicht an die Liefermöglichkeiten von angereichertem Uran binden wollen. Je nachdem, ob als Kühlmittel ebenfalls D_2O oder leichtes Wasser, Wasserdampf oder Gas (CO_2) zum Einsatz gelangt, ergeben sich verschiedene Varianten für den Kernaufbau.

An sich läßt sich auch hier das Prinzip des Siedewasserreaktors anwenden, wobei nun D_2O gleichzeitig als Moderator und Kühlmittel dient. Wegen des vergleichsweise hohen Preises für D_2O stellt die erforderliche enge Limitierung der Kühlmittelleckagen jedoch beträchtliche technische Probleme, die die Wirtschaftlich-



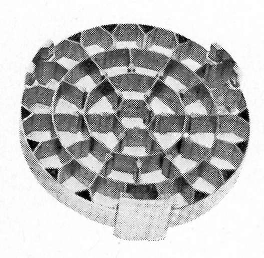


Abb. 11 Teilansicht eines Elements für einen Schwerwasserreaktor (Atucha, Argentinien). 36 Brennstäbe bilden das Bündel. Im äußeren Stabkranz befindet sich deutlich sichtbar ein brennstofffreies Tragrohr. Rechts einer der durch Funkenerosion hergestellten 14 Abstandshalter aus Zircaloy. Zur Vermeidung von Reibverschleiß zwischen Abstandshalter und Hüllrohr trägt letzteres 3 aufgeschweißte Stollen.
Foto: Siemens

keit dieses Reaktorkonzeptes beeinträchtigen. Nach einigen kleineren Versuchsanlagen in Skandinavien wurde dieser Typ nicht wieder verfolgt.

Heute interessieren nur noch die Druckkessel- und Druckröhrenreaktoren. Das Druckkesselprinzip wird z. B. beim MZFR (Mehrzweckforschungsreaktor) in Karlsruhe oder beim Atucha-Reaktor in Argentinien angewendet, das Druckröhrenkonzept u. a. im KKN-Reaktor in Niederaichbach. Moderator und Kühlmittel sind bei letzterem durch eine Druckröhre aus Zircaloy getrennt.

Der Aufbau der Brennelemente unterscheidet sich nicht grundsätzlich von dem der LWR-Brennelemente, zeigt allerdings eine kreisförmige Brennstabanordnung. (Abb. 11)

Die Länge der Brennelemente für D_2O-Reaktoren ist recht unterschiedlich. So besteht beim MZFR die vertikale Brennelementsäule aus zwei Brennelementen von je etwa 1,8 m Länge, die zusammengekuppelt sind. Beim ATUCHA-Reaktor hat man sich für ein durchgehendes Brennelment von ca. 5,5 m Länge entschieden.

Zur Verbesserung der Neutronenökonomie sind die Hüllrohrwanddicken bei den Natururanreaktoren gering gehalten; insbesondere, wenn anstelle von Zircaloy rostfreier Stahl verwendet werden muß, was beim KKN-Brennstab der Fall ist. In diesem Fall haben die Hüllrohre eine Wandstärke von nur 0,25 mm. Eben-

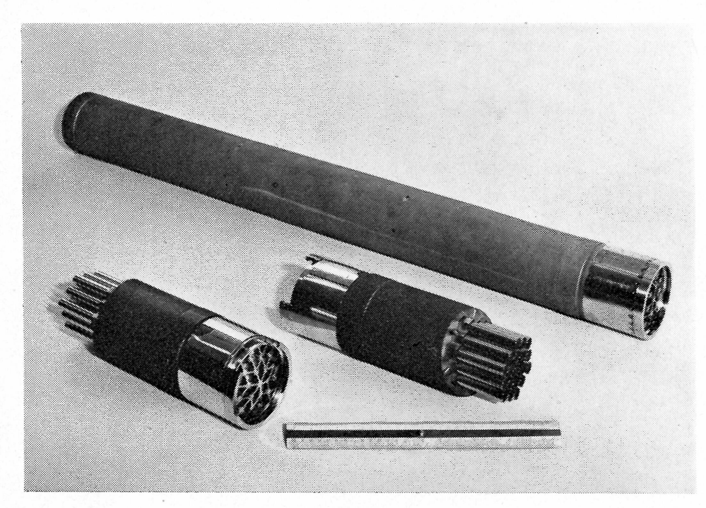


Abb. 12 Element des Schwerwasser-moderierten, CO_2-gekühlten Reaktors KKN (Niederaichbach). In dem Graphitführungsrohr befinden sich 19 Brennstäbe in hexagonaler Anordnung. 3 Abstandshalter (siehe Abb. 36) sorgen für die Führung der Stäbe.
Foto: Siemens

so wichtig ist die Einsparung von stark absorbierendem Strukturmaterial. In diesem Sinne sind die Brennelemente der D_2O-gekühlten und -moderierten Reaktoren wenn irgend möglich als „Ganz-Zirkonium"-Brennelemente ausgeführt.

Das ATUCHA-Brennelement (Abb. 11) besteht aus 36 Brennstäben und einem brennstofffreien Tragrohr im äußeren Stabkranz, das in jeder der 14 Abstandshalterebenen mit einem Federgleitschuh versehen ist. Als Abstandshalter dient ein durch Funkenerosion hergestelltes starres Zircaloy-Gitter. Um das Reibverschleißrisiko an der Kontaktstelle Brennstab/Abstandshalter zu entschärfen, werden die relativ dünnwandigen Zircaloy-Hüllrohre in den Abstandshalterebenen mit je 3 Gleitstollen am Umfang versehen.

Die Brennelemente des CO_2-gekühlten Druckröhrenreaktors KKN (Abb. 12) besitzen ein dickwandiges, profiliertes Graphittragrohr. Die 19 Brennstäbe haben hexagonale Gitteranordnung und sind mit 3 Abstandshaltern fixiert.

FGR-Elemente

Wie fast alle Elemente mit oxidischem Brennstoff stellt auch das Element des fortgeschrittenen, gasgekühlten Reaktors FGR ein Stabbündel dar (Abb. 13). Es besitzt kreisförmigen Querschnitt. Die Länge des Bündels beträgt ca. 1 m. Es ist in einem Graphitrohr aufgehängt und ähnelt somit stark dem KKN-Element. Im Kühlkanal des Reaktors stehen sechs bis acht solcher Elemente übereinander, einen Strang bildend. Eine gemeinsame zentrale

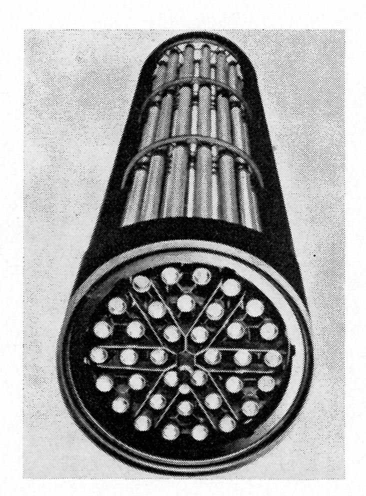


Abb. 13 Brennelement eines fortgeschrittenen gasgekühlten Reaktors (FGR). Aufbau ähnlich wie bei Abb. 12. Hier wie dort dünnwandiger Stahl als Hüllrohrmaterial.
Foto: United Kingdom Atomic Energy Authority

Stahlstange verbindet die Elemente miteinander. Sie dient zum Auswechseln des ganzen Stranges.

Zur Verbesserung des Wärmeüberganges vom Brennstab an das Kühlgas ist das Hüllrohr mit Rippen versehen, die etwa die Höhe der Hüllrohrwandstärke (ca. 0,4 mm) besitzen. Herstellung und Prüfung der Rohre wird durch diese Form sehr behindert. Die Rippen werden durch spezielle Fräsmaschinen aus einem Rohr der doppelten Wandstärke herausgearbeitet.

Im Gegensatz zu den Wasserreaktoren hat der FGR einen wesentlich geringeren Kühlmitteldruck (nur ca. 20-40 atm. gegenüber 70-150 atm. bei einem Wasserreaktor). Dem sich im Innern der Brennstäbe aufbauenden Spaltgasdruck steht also kein hoher kompensierender Reaktorsystemdruck gegenüber. Der Brennstoff wird aus diesem Grunde stets unter Temperaturbedingungen gehalten, bei denen die Freisetzung von Spaltgasen noch gering bleibt (maximale Zentraltemperatur in den Stäben etwa 1500–1600°C). Somit braucht auch im Innern der Stäbe kein freier Raum zur Aufnahme von Spaltgasen vorgesehen zu werden. Die Tablettensäulen schließen also beim FGR-Element bündig über zwei isolierende Scheibchen aus Al_2O_3 an die Endstopfen an.

Die Enden der Brennstäbe werden im Bündel durch zwei Stabhalteplatten zusammengehalten, in der oberen sind sie befestigt, in der unteren können sie sich entsprechend ihrer thermischen Ausdehnung frei bewegen. In der Mitte des Bündels sind zur Fixierung des Brennstabes zwei zusätzliche Abstandshalter angebracht.

Im Laufe der Entwicklung der Reaktortechnik wurde eine beträchtliche Anzahl weiterer Reaktorvarianten verfolgt, wobei z. T. andere Kühlmedien und Moderatorsubstanzen zum Einsatz kamen. Sie konnten aber keine größere wirtschaftliche Bedeutung erlangen, weil entweder die Werkstoffprobleme nicht zu befriedigenden technischen Lösungen führten oder die Stromgestehungskosten zu hoch im Vergleich zu anderen Reaktortypen ausfielen.

Die Brennelemente von zwei Reaktortypen, die auch in Deutschland bis zur Prototypreife entwickelt wurden, seien jedoch im folgenden kurz angeführt.

HDR-Elemente

Der Heißdampfreaktor (HDR) verdient Interesse, weil hier in Weiterentwicklung des Siedewasserreaktors angestrebt wurde, Dampfzustände zu erreichen, die denen moderner konventioneller Hochleistungskraftwerke gleichkommen. Dies wurde auch hinsichtlich der Dampftemperatur weitgehend erreicht. Das deutsche HDR-Konzept bedient sich dazu eines Brennelementes, bei dem Sieden und Überhitzen kombiniert ist, wobei der Einzelstab als Rohr ausgebildet ist (Abb. 14). Die äußere Hülle des ringförmigen Brennstoffes befindet sich im Wasser bei Bedingungen, die denen des Siedewasserreaktors entsprechen. Eine zweite, innere Hülle trennt den Brennstoff von einem koaxial angeordneten zentrischen Dampfführungsraum, durch den der außen erzeugte Sattdampf

zur Nachüberhitzung bis auf rd. 500°C geleitet wird. Diese Brennrohre werden wiederum zu Bündeln zusammengefaßt, wobei der Dampf in mehreren Durchgängen auf seine Endtemperatur überhitzt wird. Charakteristisch sind die dazu erforderlichen Dampfführungsteile und -sammler.

Im HDR-Prototyp wurde für die Außenhülle 16/16-Cr/Ni-Stahl, als dampfführende Innenhülle Inconel-625 gewählt. Der Außendurchmesser beträgt 26,5 mm, der Innendurchmesser des Innen-

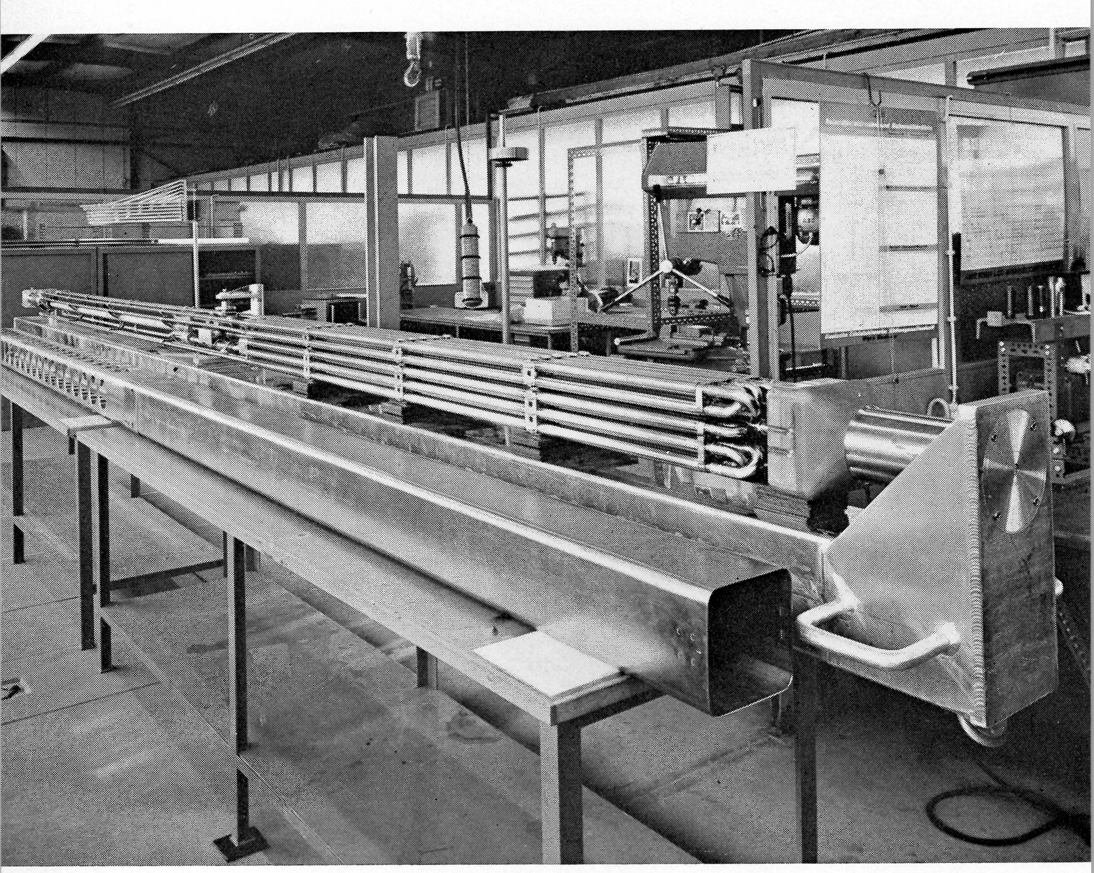


Abb. 14 Brennelement des Heißdampfreaktors HDR in Großwelzheim. Nur der untere Teil (im Bild rechts) enthält den Brennstoff ringförmig zwischen zwei koaxial angeordneten Hüllrohren. Der am äußeren Hüllrohr gebildete Sattdampf wird im inneren Hüllrohr überhitzt. Die rechts im Bild sichtbaren Schleifen dienen der Führung des Heißdampfes.
Foto: AEG

hüllrohres 12,5 mm. Die aktive Länge beträgt 1800 mm, 24 Rohre sind zu einem Bündel zusammengefaßt, dessen Querschnitt quadratisch ist (5 x 5 mit freier zentraler Position für die Dampfführung). Als Brennstoff dient UO_2, der bis zu rd. 85 % der theoretischen Dichte in die Stäbe einvibriert wird.

KNK-Elemente

Die KNK (Kompakte Na-gekühlte Kernkraftanlage) interessiert als thermische Vorstufe für den Schnellen Brutreaktor, da sie bereits Natrium als Kühlmedium vorsieht. Ihr Brennelement (aktive Länge der UO_2-Tabletten 1450 mm) ist ein kombiniertes Brennstoff-Moderatorelement, in dem der Brennstoff in Form von Brennstäben und der Moderator in Form von Zirkonhydridformkörpern zusammengefaßt werden (Abb. 15).

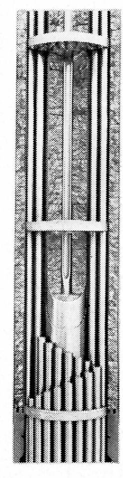


Abb. 15 Ausschnitt aus einem Element des KNK-Reaktors. Zwei Ringe Brennstäbe sind um einen Moderator (Zirkonhydrid) angeordnet. Außerhalb der Brennstäbe befindet sich ebenfalls ein Moderatorteil, der jedoch im Reaktor verbleibt und nicht ausgewechselt wird. Drei Abstandshalter sind sichtbar.
Foto: INTERATOM

Das Element besteht aus zwei ringförmig angeordneten Brennstabkränzen, die sich zwischen einem zentralen zylindrischen und einem äußeren ringförmigen Moderatorteil befinden, der beim Auswechseln im Reaktor verbleibt. Sieben Abstandshalter sind über die Länge verteilt, die aus 10 mm hohen Rohrabschnitten von 3,8 mm Durchmesser zusammengesetzt sind. Die Rohrstücke sind miteinander und mit einer Randbandage verlötet.

Der Brennstab besteht aus einem beiderseitig verschlossenen Hüllrohr aus 16/13-Cr/Ni-Stahl (9,5 x 0,3 mm). Im unteren Brenn-

stabteil befindet sich der Spaltgasraum, im oberen Stabteil hält eine Feder die Tablettensäule zusammen.

Innerer und äußerer Moderatorteil bestehen aus zylindrischen bzw. ringförmigen Zirkonhydridkörpern, die in dünnwandigen Hüllrohren aufgeschichtet sind. Oberhalb und unterhalb des Moderatorbereiches schließen sich Stahlreflektoren an. Die Spalte zwischen den Zirkonhydridkörpern und den umhüllenden Rohren sind zur besseren Wärmeleitung mit Natrium gefüllt. Am unteren Ende des äußeren Moderatorteiles befindet sich eine Drosseleinrichtung, über die im Betrieb der Na-Durchfluß durch das Element individuell eingestellt werden kann.

Elemente von Brutreaktoren

Während bei den bisher behandelten Brennelementen für thermische Reaktoren bereits Erfahrungen im Betrieb größerer Leistungsreaktoren vorliegen, befindet sich das Brennelement für den Schnellen Brutreaktor noch in der Entwicklung. Als Kühlmittel wird heute allgemein Natrium angewendet, aber auch Gaskühlung (Helium) in Betracht gezogen. Daneben wurde, vor allem in Deutschland, auch die Dampfkühlung verfolgt.

Anders als die Stabbündel der Wasser- und thermischen Gasreaktoren sind die Brennstäbe für den Schnellen Brutreaktor mit Na-Kühlung in einer dichtesten hexagonalen Anordnung zu Stabbündeln zusammengesetzt (Abb. 16). Der Brennstabdurchmesser

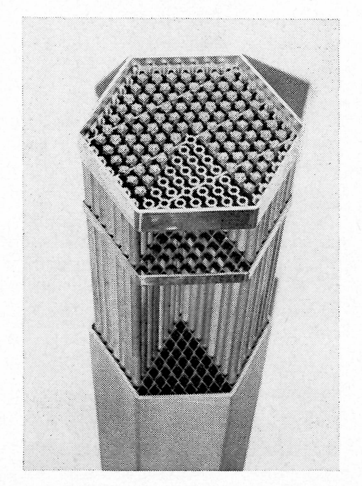


Abb. 16 Draufsicht auf ein Element für den Brutreaktor SNR. Die Stäbe haben einen wesentlich kleineren Durchmesser als bei thermischen Reaktoren (nur 6 mm). Sie sind hexagonal angeordnet und werden von Abstandshaltern gehalten, deren endgültige Ausbildung noch diskutiert wird. Der Brennstoff besteht im mittleren Teil des Stabes aus UO_2-PuO_2, im oberen und unteren Teil jedoch nur aus UO_2 (Brutzone). Foto: INTERATOM

liegt zwischen 6 und 8 mm, wobei in Zukunft eine Tendenz zum größeren Durchmesser vorliegt.

Die Brennstäbe sind in hexagonalen Hüllkästen angeordnet und am unteren Ende im Elementfuß verschraubt. Im Kopfstück ist ein Vermischungseinsatz für den Abbau der über den Elementquerschnitt auftretenden Temperaturdifferenzen im Natrium angebracht. Für den deutschen Prototyp (SNR [7]) 300 MWe) weist der Kasten eine Schlüsselweite von 110 mm, das gesamte Element eine Länge von 3300 mm und eine Brennstablänge von 2475 mm auf. Die Brennstäbe sind über ihre Länge durch mehrere Abstandshalter geführt, die entweder aus ineinandergesteckten Bändern, aneinandergefügten Rohrabschnitten oder zusammengeschweißten Formbändern bestehen; eine durch Funkenerosion aus dem massiven Material herausgearbeitete starre Variante ist ebenfalls in Betracht gezogen. Für fortschrittliche Elementkonzepte werden um die Stäbe gewickelte Drähte oder der Einsatz von Rippenrohren untersucht, diese Anordnung erlaubt einen noch engeren Stabmittenabstand als der für den deutschen SNR-Prototyp von 7,9 mm bei 6 mm Stabdurchmesser festgelegte.

Abstandshaltervarianten

Brennstoffzone – Brutzone

Die Brennstäbe enthalten eine PuO_2-UO_2-Brennstoffzone und eine obere und untere UO_2-Brutzone. Der Raum zur Aufgabe der freigesetzten Spaltgase ist im unteren Brennstabteil angeordnet.

Die besondere Problematik der Brennelemente für Schnelle Brutreaktoren liegt in der extrem hohen Beanspruchung der Werkstoffe. Im Vergleich zum Wasserreaktor ist das um 1000mal höhere Energienivau der Neutronen, die um 1000mal größere Neutronenflußdichte, die entsprechend höhere Neutronendosis, der um mehr als zweimal größere Abbrand und die höhere Temperatur des Hüllwerkstoffes hervorzuheben.

Diese Beanspruchung hat beträchtliche Festigkeits- und Duktilitätsprobleme, Werkstoffschwellen bei hohen Neutronendosen und chemischen Angriff der Hülle von innen durch den Brennstoff und die Spaltprodukte nach hohem Abbrand zur Folge.

Bei Verwendung von Karbid als Brennstoff anstelle von Oxid kommen zusätzlich neue Brennstoffprobleme hinzu, so z. B. die Gefahr einer überhöhten Aufkohlung der Hülle durch freien Kohlenstoff.

Das Werkstoffschwellen stellt den Konstrukteur vor eine schwieriege Aufgabe, da insbesondere die Hüllkästen durch steile Fluß- und Temperaturgradienten zu unterschiedlicher Volumenänderung neigen, was zu Verbiegungen und damit kaum überschaubaren Kräfte- und Spannungsverhältnissen im gesamten Kern des Reaktors führen kann. Durch Drehen einzelner Elemente will man die Verbiegung reduzieren; allerdings darf das nicht die Verfügbarkeit der Anlage beeinträchtigen. Es ist aber wahrscheinlich, daß das Schwellen einem Grenzwert zustrebt, den man durch beson-

[7]) SNR = **S**chneller **N**atriumgekühlter **R**eaktor

dere Auswahl und metallurgische Vorbehandlung der Werkstoffe günstig zu beeinflussen sucht.

Plattenbündel

Die in großer Anzahl in Forschungszentren und an Universitäten arbeitenden Forschungs-, Ausbildungs- und Testreaktoren, insbesondere die Schwimmbadreaktoren, benutzen meist sogenannte

MTR-Elemente

MTR-Elemente (siehe Abb. 9). Ein MTR-Element stellt ein Plattenbündel dar. In einem rechteckigen Kasten aus Aluminium der

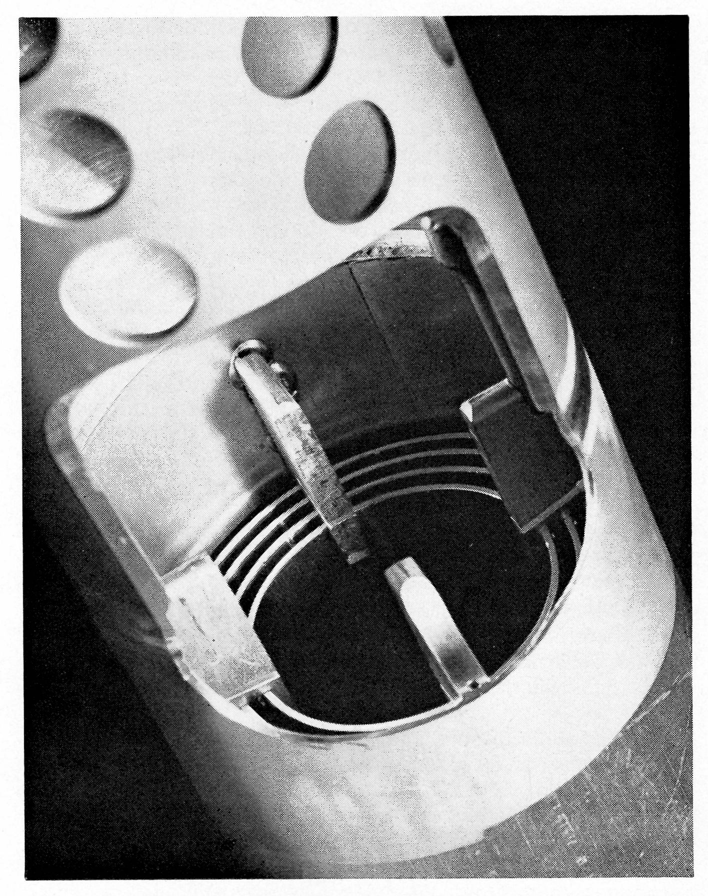


Abb. 17 Konzentrisches Element für den Forschungsreaktor DIDO in Jülich. An die Stelle des parallelen Bündels der Standard-Elemente (siehe Abb. 9) ist hier eine Anordnung aus ineinandergesteckten Rohren getreten, die innen einen Raum für Bestrahlungsproben freiläßt.
Foto: NUKEM

ungefähren Abmessungen 75 x 75 x 600 mm befinden sich 12-23 Aluminiumplatten von etwa 1,3 mm Dicke. Der Kühlkanal zwischen den Platten beträgt etwa 2 mm. Im Innern der einzelnen Platten befindet sich eine dünne Schicht (ca. 0,6 mm) mit dem Brennstoff, z. B. einer Legierung aus 20-25 % hochangereicherten Urans mit Aluminium. Diese dünne Schicht ist allseits von Aluminium umgeben. Brennstoff und Hüllmaterial besitzen die ausgezeichnete Wärmeleitfähigkeit des Aluminiums. Bei der plattenförmigen Anordnung des Brennstoffs ist die Kühlfläche sehr groß, so daß auch bei hoher thermischer Belastung keine Temperaturen im Innern auftreten, die über 100°C nennenswert hinausgehen.

Dispersionsbrennstoff

Der Brennstoff ist ein typisches Beispiel für einen Dispersionsbrennstoff, bei dem Uran nicht in reiner Form angewendet wird (etwa als Metall oder Oxid), sondern mit einem nichtspaltbaren, die Wärme gut ableitenden Stoff verdünnt ist.

Die thermischen Belastungen können dabei in weiten Grenzen schwanken. Sie betragen bei Schwimmbadreaktoren etwa 60 W/cm². Dieser Wert kann aber bei modernen Hochflußreaktoren weit überschritten werden.

Das Grundprinzip des Plattenbündels gestattet eine Reihe von Abwandlungen. Testreaktoren benutzen z. B. gern Elemente, die im Innern ein freies Volumen für Bestrahlungen enthalten. Die Platten sind dann entweder konzentrisch angeordnet, oder aber evolventenförmig. In beiden Fällen ist der Plattenabstand gleich. Während im ersten Fall verschiedene Plattenbreiten verwendet werden, was die Herstellung verteuert, sind im zweiten Fall die Plattenbreiten gleich, allerdings mit dem Nachteil des komplizierteren Zusammenbaues (Abb. 17).

RHF-Elemente

Die Hochflußreaktoren HFIR (**H**igh **F**lux **I**sotope **R**eactor) und RHF (**R**éacteur à **H**aut **F**lux, das deutsch-französische Gemeinschaftsprojekt in Grenoble/Frankreich) benutzen eine Sonderform des Elementes, bei dem nur eines den Kern des Reaktors bildet. So setzt sich das RHF-Element aus 280 evolventenförmig gebogenen Platten zusammen, die zwischen zwei konzentrischen Aluminiumrohren angeordnet sind (Abb. 18).

Einzelstäbe

Die ersten Reaktoren, wie etwa der jetzt stillgelegte Reaktor X10 in Oak Ridge, verwendeten natürliches Uranmetall in Form von Stäben als Brennstoff. Die Kühlung erfolgte durch Luft, die durch die horizontal angeordneten Kühlkanäle im Graphitblock gedrückt wurde. Die Länge dieser Stäbe betrug 200-300 mm, in Ausnahmefällen auch mehr. Der Durchmesser lag bei 20-30 mm. Diese Uranstangen waren zur Umhüllung in ein Aluminiumrohr eingeschweißt. Dieses Rohr hatte normalerweise keine Rippen; die Wärmebelastung der Stäbe war gering.

Daneben existierte eine zweite Art von Forschungsreaktoren, die ebenfalls Uranstangen als Brennelemente verwendeten. Diese Reaktoren benutzten Schwerwasser als Moderator und Kühlmittel. Die Elemente hingen in einem Tank. Sie waren 2-3 m lang.

Der Durchmesser betrug ebenfalls 2-3 cm, gelegentlich auch mehr. Auch hier dienten Aluminiumrohre zur Umhüllung. Wenn Rippen angebracht waren, dann meist nur, um das Element in einem umgebenden Kühlrohr zu konzentrieren. Beispiele für diese Reaktoren sind der NRX in Kanada und der FR-2 in Karlsruhe, Deutschland (nur 1. Kern).

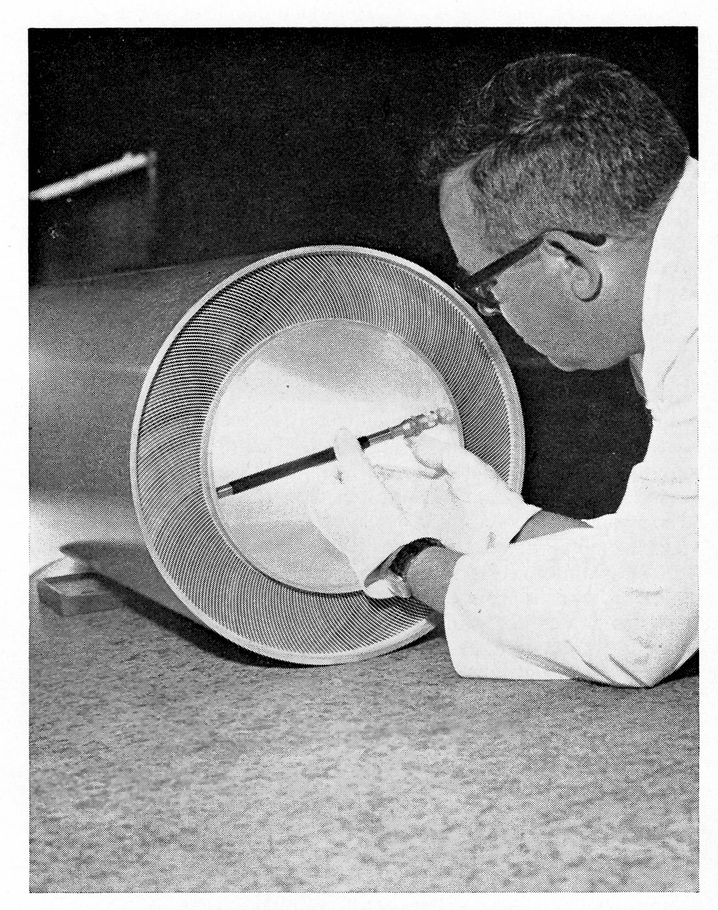


Abb. 18 Innerer brennstoffhaltiger Teil des Elementes für den Hochflußreaktor RHF in Grenoble. Zwischen zwei Aluminiumrohren mit den ungefähren Durchmessern 275 und 400 mm sind 280 evolventenförmige Platten angeordnet. Plattenlänge ca. 900 mm. (Entwicklung des Elementes durch NUKEM, Deutschland und CERCA, Frankreich).
Foto: NUKEM

Durch die Wasserkühlung waren solche Elemente thermisch wesentlich höher belastet als gasgekühlte Elemente. Es entstanden hohe thermische Gradienten im Innern, die zu einem baldigen Versagen der Elemente führten.

Reaktoren dieser Art sind entweder heute fast ausnahmslos stillgelegt oder aber sie wurden auf oxidischen Brennstoff in bündelförmigen Elementen umgestellt, wie das beim Karlsruher FR-2 der Fall ist (ab 2. Kern).

Magnox-Elemente

Natururanstangen werden jedoch noch heute in großem Maßstab von den schon erwähnten „Magnox"-Reaktoren benutzt (Abb. 6). Der Name stammt von der zur Umhüllung benutzten Magnesium-Legierung mit geringen Zusätzen an Al, Ca und Be zur Herabsetzung der im heißen zur Kühlung benutzten CO_2-Gas stattfindenden Oxidation.

Die französischen Magnox-Reaktoren werden horizontal beschickt, die englischen senkrecht. Die französischen Elemente sind kürzer als die englischen. Bei den englischen hängt im Kühlkanal ein Element am anderen. Um schädliche Einflüsse durch das Kriechen des Uranmetalls bei den oberen Elementen, die die größte Last zu tragen haben, zu vermeiden, hängt man bei einigen Reaktoren die Elemente in Graphitrohre auf und stellt die Rohre übereinander.

Hüllrohrrippen

Die Hüllrohre der Magnox-Elemente sind mit komplizierten Rippenprofilen versehen, die den Wärmeübergang an das zur Kühlung benutzte CO_2-Gas verbessern sollen. Der erste Reaktor dieser Art, der Calder Hall Reaktor, benutzte ursprünglich lange zur Strömungsrichtung senkrechte Rippen. Heute hat sich eine fischgrätenartige Anordnung der Rippen weitgehend durchgesetzt (siehe Abb. 37). Bemerkenswert ist, daß man eine solche Rippenform den Rohren nicht bei ihrer Herstellung aufprägen kann. Sie muß durch Fräsen angebracht werden.

TRIGA-Elemente

Auch die amerikanischen von der GGA (Gulf General Atomic) hergestellten TRIGA-Reaktoren (**T**raining, **R**esearch, **I**sotope der **G**eneral **A**tomic) besitzen stabförmige Elemente. Der Reaktor, der einem Schwimmbadreaktor ähnelt, besitzt unter einer mehr als 6 m hohen Wassersäule einen Kern, der aus einer Anzahl Stäbe mit dem ungefähren Durchmesser von 30 mm besteht. Die Stäbe bestehen aus Zirkonhydrid, dem einige Prozent hochangereichertes Uran beigemischt sind.

Hochtemperaturelemente

Wie schon erwähnt, besitzen Hochtemperaturelemente heute noch eine Vielfalt möglicher Brennelementformen, die alle deutlich von den bisher behandelten abweichen.

Diese Elementformen sind:

Stäbe beim amerikanischen Peach-Bottom-Reactor (40 MWe).

Bündel aus 7 Stäben beim englischen Dragon-Typ (25 MWe, Abb. 19).

Sechseckige Blöcke bei modernen englischen und amerikanischen Reaktoren, z. B. dem amerikanischen Fort St. Vrain

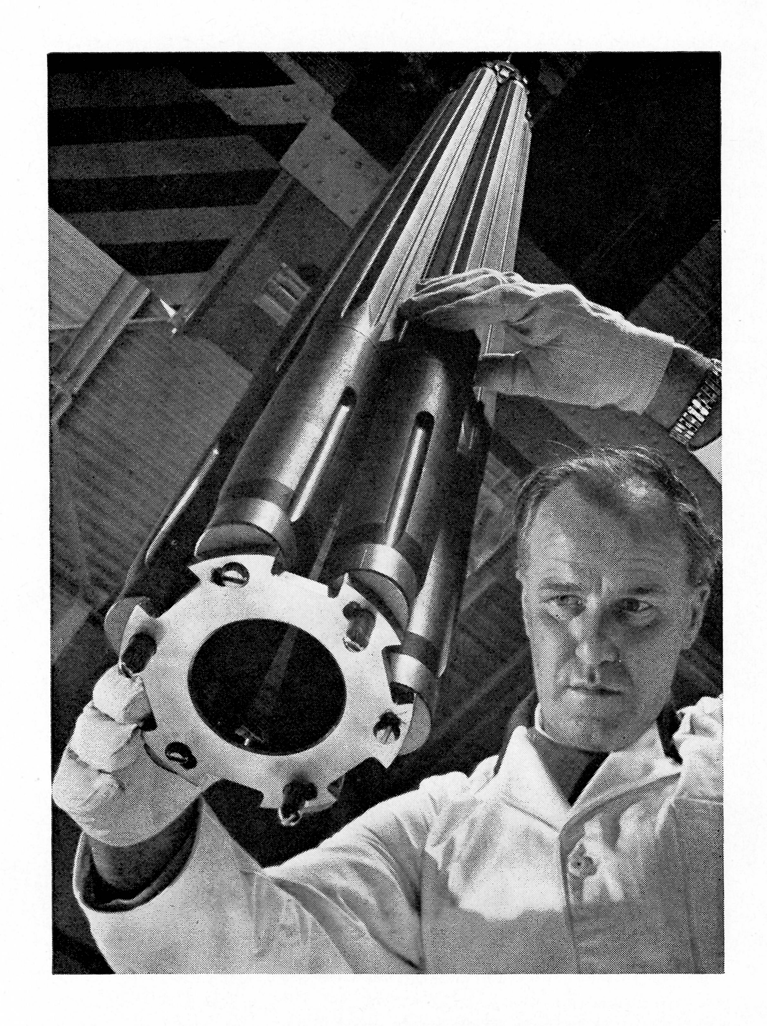


Abb. 19 Element des Dragon-Hochtemperaturreaktors. Das etwa 1 m lange Element besteht aus einem Kranz von 6 Stäben (sogen. „driver-fuel"). Im Inneren der mit Rippen versehenen Graphitrohre muß man sich die ringförmigen Brennstoffeinsätze (sogen. „fuel-compacts") vorstellen. Der zentrale Hohlraum enthält im Reaktor Bestrahlungseinsätze.
Foto: DRAGON Project

Reaktor (300 MWe), der 1972 seinen Betrieb aufnehmen soll (Abb. 8).

Kugeln bei den deutschen Reaktoren AVR (Arbeitsgemeinschaft Versuchs-Reaktor, 15 MWe) in Jülich und THTR (Thorium Hochtemperaturreaktor, 300 MWe) in Schmehausen bei Hamm (Abb. 20).

Allen gemein ist die Verwendung von beschichteten Teilchen und von Graphit als Struktur- und Hüllmaterial.

Meist werden die beschichteten Teilchen mit einer vorwiegend aus Graphit bestehenden, mit Binder versehenen Preßpulvermasse zu Formkörpern vereinigt, z. B. zu Ringen. Solche Ringe, in Graphitrohre über einen Dorn eingebracht, bilden z. B. die stab- und bündelförmigen Elemente des Peach Bottom und Dragon Reaktors. Stab- und bündelförmige Elemente lassen sich jedoch nur bei kleinen Leistungen einsetzen.

Block

Blockförmige Elemente sind dagegen bis zu hohen Reaktorleistungen verwendbar. Sie bestehen aus axial durchbohrten Graphitblöcken mit meist sechseckiger Grundfläche von etwa 1 m Höhe und 40–60 cm Schlüsselweite (s. Abb. 8). Sie enthalten entweder in einem Teil der Bohrungen Stäbchen aus beschichteten Parti-

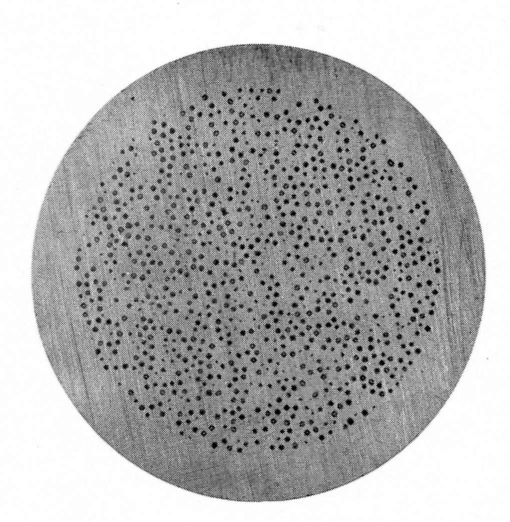


Abb. 20 Querschnitt durch das kugelförmige Brennelement des THTR-Reaktors (Durchmesser 60 mm). Man erkennt deutlich die beschichteten Partikeln (Ausschnitt in Abb. 22), die in die graphitähnliche Matrix eingebettet sind. Außen eine brennstofffreie Schale aus dem Matrixmaterial.
Foto: NUKEM

keln, die mit Harzen zusammengehalten sind, die restlichen Bohrungen dienen dann zur Kühlgasführung; oder aber in den Bohrungen sind Brennstäbe in Stangenform enthalten, die die Bohrung nicht voll ausfüllen, sondern einen Kühlspalt für das Kühlmittel freilassen. In den Stangen befinden sich ebenfalls die obenerwähnten Brennstoffringe.

Kugel Die Elemente des Kugelhaufenreaktors sind ebenfalls bis zu hohen Reaktorleistungen verwendbar. Sie stellen einen Sonderfall dar, der mit keinem anderen Brennelement verglichen werden kann. Der Kern eines Kugelhaufenreaktors besteht aus einer Kugelschüttung.

Sowohl der AVR als auch der THTR (Abb. 20) verwenden Kugeln von 60 mm Durchmesser, die sich im wesentlichen nur in der Brennstoffbeladung unterscheiden. Diese Kugeln enthalten unter einer brennstofffreien Graphitschale einen Kern, der ganz analog wie die obenerwähnten Brennstoffringe zusammengesetzt ist. Die Kugelschüttung im THTR-Reaktor besitzt eine Höhe von über 5 m. Sie besteht aus etwa 675 000 Kugeln. Die Kräfte, die auf eine Kugel im unteren Teil des Kern ausgeübt werden, sind also beachtlich hoch. Deswegen muß auch die Festigkeit der Brennelemente bestimmte Werte erreichen. Spezifiziert ist diese Festigkeit als „Zerdrückfestigkeit“ mit 1800 kp/mm^2.

Abgeschaltet und getrimmt wird der Reaktor mit Absorberstäben, die von oben in die Kugelschüttung einfahren. Auch hierbei werden unter Umständen starke Kräfte auf einzelne Brennelemente ausgeübt, die bei der Entwicklung beachtet werden müssen.

Eine weitere, für Brennelemente ungewohnte Beanspruchung resultiert auch aus der Tatsache, daß sich die Elemente aneinander reiben. Mithin muß auch die Abriebfestigkeit bei Entwicklung und Aufstellung der Spezifikation berücksichtigt werden.

3.1.2 Brennstoffe, Brutstoffe, Werkstoffe

Brennstoff Als spaltbares Isotop kommt in der Natur lediglich das U-235 vor, das sich zu ca. 0,7 % im natürlich vorkommenden Uran befindet. Daneben können sich im Reaktor, wenn die Isotope U-238 oder oder Th-232 zugegen sind, durch Reaktion mit Neutronen zwei weitere spaltbare Isotope bilden, das Pu-239 und das U-233 nach folgenden Gleichungen:

$$U^{238} \xrightarrow{n} U^{239} \xrightarrow[24']{\beta} Np^{239} \xrightarrow[2{,}4d]{\beta} Pu^{239} \qquad Th^{232} \xrightarrow{n} Th^{233} \xrightarrow[22']{\beta} Pa^{233} \xrightarrow[27d]{\beta} U^{233}$$

Der Kernbrennstoff wird also an spaltbaren Stoffen stets eines der drei Isotope U-235, U-233, Pu-239 enthalten.

Brutstoff U-238 und Th-232 bezeichnet man als Brutstoffe, weil aus ihnen, obwohl sie selbst unspaltbar sind, durch Reaktion mit Neutronen

Kernbrennstoffe erzeugt – erbrütet – werden können. Diese Brutstoffe können entweder spaltbaren Isotopen zugemischt werden oder es können, wie das beim Brutreaktor erfolgt, besondere Brutzonen um den Kern angeordnet werden, die dann den Brutstoff rein enthalten.

Im Prinzip ist es für die Kernspaltung und für die Kernreaktionen, die zur Bildung spaltbarer Isotope führen, gleichgültig, in welcher chemischen Form sich Spaltstoff und Brutstoff befinden. Als Kernbrennstoff ließe sich also das ganze komplizierte Spektrum der chemischen Verbindungen des Urans und Plutoniums vorsehen. Es ist aber zu bedenken, daß durch das dauernde Bombardement atomarer Teilchen die Auswahl stark eingeschränkt wird. Man kann also als Brenn- oder Brutstoff nur strahlenstabile Stoffe benutzen, die den mehrjährigen Einsatz im Reaktor überstehen. Die wichtigsten, heute verwendeten Kernbrennstoffe sind

als reines Element bzw. als reine Verbindung
- Uranmetall
- Uranoxid
- U-Th-Mischoxid
- U-Pu-Mischoxid
- U-Pu-Mischkarbid

als Dispersionsbrennstoff
- beschichtete Partikeln in Graphit
- UAl_4, UAl_3 oder U_3O_8 in Aluminium.

U-235 ist heute mit Abstand das wichtigste spaltbare Isotop. U-233 existiert noch nicht in größeren Mengen. Es wird erst dann anfallen, wenn Reaktoren mit thoriumhaltigem Brennstoff, also z. B. Hochtemperaturreaktoren, in größerer Anzahl arbeiten. Die Verarbeitung von U-233 bringt große Schwierigkeiten mit sich, weil der Brennstoff eine starke eigene Strahlung besitzt. U-233 als Brennstoff ist also heute noch nicht aktuell. Anlagen zu seiner Verarbeitung befinden sich am Anfang der Entwicklung. Es soll in diesem Rahmen deshalb nicht weiter über U-233 berichtet werden.

Plutonium weist ebenfalls gewisse Schwierigkeiten der Verarbeitung auf. Im Gegensatz zu U-233 ist es jedoch schon in größerem Umfang verfügbar. Es wird zur Rückführung in thermische Reaktoren oder aber in Brutreaktoren eingesetzt. Ihm ist deshalb ein besonderes Kapitel gewidmet worden (Kapitel 3.6). An dieser Stelle wird also nur über die verschiedenen Arten von Brennstoff berichtet werden, die U-235 als spaltbares Isotop enthalten.

Uranmetall

Solange die thermische Belastung, die Temperatur und der Abbrand gering waren, wie bei den ersten Reaktoren, läßt sich Uranmetall gut als Kernbrennstoff einsetzen. Die hohe Dichte von über 19 g/cm³ kommt dem sehr entgegen (Siehe Tab. 6). Bei höheren Anforderungen zeigt Uranmetall jedoch eine Reihe von Schäden, die bewirkt haben, daß der Einsatz von Uranmetall in modernen Reaktoren stark zurückgegangen ist. Heute benutzen

nur noch die Magnox-Reaktoren mit ihren geringen Leistungsdichten von 2–3 kW/kg in England und Frankreich metallische Brennelemente. Immerhin erfolgt deren Herstellung in großtechnischem Maßstab in einer Menge, die 2000 t Uran/Jahr übersteigt (s. Abschnitt 3.3).

Uranmetall kommt in drei verschiedenen Modifikationen vor, zeigt also das Phänomen der Allotropie. Die Umwandlungspunkte liegen bei etwa 660 und etwa 770°C. Da sich bei diesen Umwandlungspunkten eine Reihe von Eigenschaften, u. a. auch das spezifische Volumen, sprunghaft ändern, darf man die Umwandlung im Reaktor nie durchlaufen. 660°C stellt also eine obere Temperaturgrenze dar. Die drei Modifikationen werden mit Alpha-, Beta- und Gamma-Uran bezeichnet. Alpha- und Beta-Uran sind anisotrop, d. h., daß einige mechanische und physikalische Eigenschaften von der Richtung im Kristall abhängen. Hierdurch kann unter Bestrahlung ein Wachstum eintreten, das in kurzer Zeit das Brennelement zerstört. Dieses Wachstum ist jedoch nur dann möglich, wenn durch Verformen des Metalls eine Vorzugsorientierung der einzelnen Metallkörner (eine sogenannte Textur) entstanden war. Eine solche Textur kann durch eine Wärmebehandlung wieder entfernt werden. Gleichzeitig wird dadurch ein feines Korn erzielt, das ebenfalls für das Reaktorverhalten wichtig ist. In Abschnitt 3.3 ist diese Wärmebehandlung bei der Herstellung von Magnox-Elementen beschrieben.

Metallische Brennelemente, die bei Temperaturen oberhalb etwa 400°C betrieben werden, können einen weiteren unangenehmen Schaden aufweisen, das sogenannte Schwellen. Die Ursache des Schwellens sind kleine Blasen von Spaltgasen, besonders Krypton. Das Uran wird durch die Blasen aufgebläht, die Hülle kann zerstört werden. Das Schwellen läßt sich durch Zusatz von geringen Mengen an Aluminium und Silizium, wie in Kapitel 3.3 beschrieben, verringern. Trotz dieser Maßnahmen bleibt das Abbrandverhalten von Uranmetall schlecht. Es ist dies der Hauptgrund, daß heute fast ausschließlich keramischer Brennstoff benutzt wird, also besonders UO_2. Die Uranlegierung mit Aluminium, die man bei MTR-Elementen verwendet, gehört zum Typ der Dispersionsbrennstoffe, der aus Gründen, die weiter unten aufgezeigt sind, ein wesentlich günstigeres Abbrandverhalten aufweist als reines Uranmetall. Große Anstrengungen wurden unternommen, um durch Legieren stabilere Kernbrennstoffe zu erhalten. Obwohl man hier eindrucksvolle Erfolge erzielt hat, werden, wenn man vom MTR-Brennstoff absieht, Uranlegierungen in der Praxis nicht weiter verwendet.

Uranoxid Uranoxid zeigt die aufgeführten Schwierigkeiten des Uranmetalls nicht (Siehe Tab. 6). Das Phänomen der Allotropie tritt bei ihm nicht auf, weil im ganzen Temperaturbereich bis hinauf zum Schmelzpunkt bei ca. 2750°C nur eine Modifikation existiert. Diese Modifikation ist isotrop. Ein gerichtetes Wachstum wie beim

Tab. 6: Einige Eigenschaften der wichtigsten Kernbrennstoffe

Brennstoff	Röntgendichte bei Zimmertemperatur	Schmelzpunkt °C	Modifikationen	Strukturen	Wärmeleitfähigkeit in W/cm°C bei 500°C	1500°C
U-Metall	19,04	1.132	α-U <668°C β-U 668–775°C γ-U 775–1132°C	ortho-rhombisch tetragonal kub. rz.	0,3	
UO_2	10,97	2.750	keine Umwandlung	kub. flz. (ZnF_2)	0,047	0,025
UC	13,63	2.500	keine Umwandlung	kub. (NaCl)	0,16	0,17
UC_2	11,6	2.400	$< \sim$ 1.800°C $> \sim$ 1.800°C	tetragonal kubisch flz.		
Dispersionsbrennstoff, im wesentlichen entsprechend dem Matrixmaterial						
Pu-Metall	19,82	639	α-Pu <122°C β-Pu 122–206°C γ-Pu 206–319°C δ-Pu 319–451°C δ'-Pu 451–480°C ε-Pu 480–639°C	monoklin monoklin ortho-rhombisch kub. flz. tetragonal kub. rz.	0,3	
PuO_2	11,46	2.280	keine Umwandlung	kub. flz. (ZnF_2)	0,047	0,025
PuC	13,6	1.654	keine Umwandlung	kub. flz.	0,16	0,17

Uranmetall ist in Uranoxid also nicht möglich. Verglichen mit der niedrigen Temperaturbegrenzung bei 660°C erlaubt die hohe Schmelztemperatur von UO_2 einen viel weiteren Anwendungsbereich.

Die Wärmeleitfähigkeit von UO_2 ist gering. Bei höheren Leistungsdichten des Brennstoffs treten also starke Temperaturgradienten auf, unter deren Einfluß das UO_2 in grobe Stücke zerspringt. Diese Sprünge heilen zum Teil aber wieder aus. Man findet im bestrahlten Brennstoff nur wenige Sprünge, die senkrecht zum Radius verlaufen, so daß die Wärmeabfuhr aus dem Brennstoff ins Kühlmittel kaum behindert wird. Bei Temperaturen oberhalb etwa 1600°C tritt im UO_2 Rekristallisation und später auch eine Porenwanderung zum Zentrum auf. Durch die damit verbundene Korngrenzenverschiebung werden die Spaltgase aus dem Brennstoff ausgetrieben. Im Gegensatz zum Verhalten im Uranmetall können diese also den eigentlichen Brennstoff verlassen und sich außerhalb der Tablettensäule innerhalb des Hüllrohres ansammeln. Man muß dem Rechnung tragen und ein Gasplenum zur Aufnahme dieser Gase vorsehen.

Die geschilderten Veränderungen im Brennstoff spielen sich alle ab, ohne die Hülle anzugreifen. Dies gilt zum mindesten für thermische Reaktoren, die mit Abbränden arbeiten, bei denen ein Schwellen noch nicht auftritt. Schäden an oxidischen Brennelementen thermischer Reaktoren, die man bisher beobachtet hat, hatten überwiegend ihren Ausgangspunkt in fehlerhaftem Hüllmaterial oder schlechter Verarbeitung.

Bei höheren Abbränden, etwa oberhalb 30 000 MWd/tU, beginnt UO_2 zu schwellen. Aus diesem Grund sieht man bei Brutreaktoren Brennstoff geringer Dichte vor, weil das Porenvolumen zum Auffangen des Schwellens dienen kann. Erst wenn dies aufgefüllt ist, würde die Hülle von innen durch den schwellenden Brennstoff belastet werden. Auch der chemische Angriff der Spaltprodukte auf die Hülle kann bei solch hohen Abbränden zu einem Problem werden.

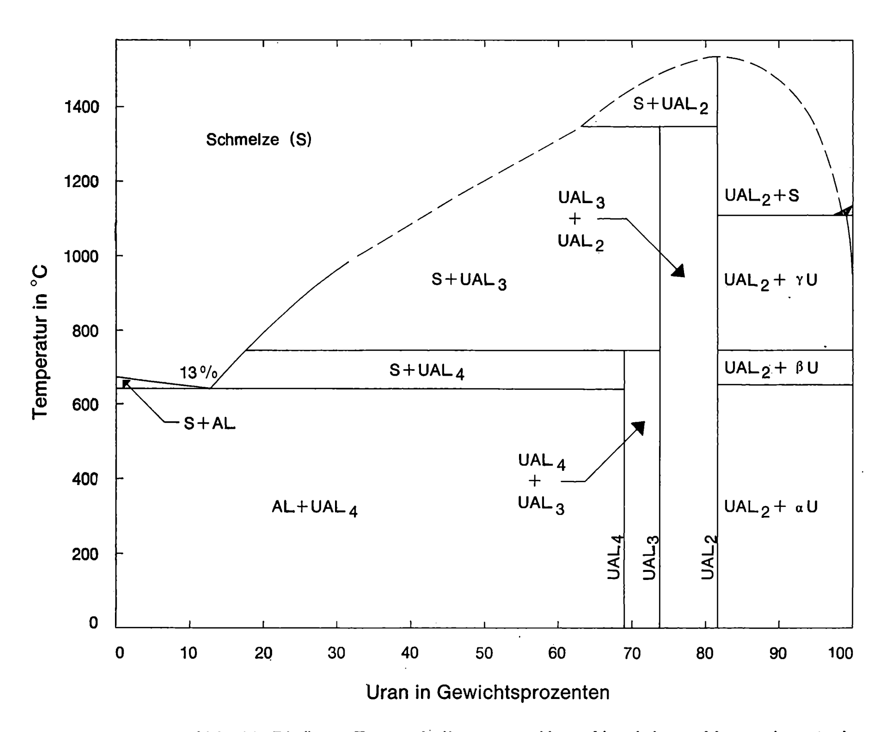


Abb. 21 Binäres Zustandsdiagramm Uran-Aluminium. Man erkennt das Auftreten von drei intermetallischen Verbindungen UAl_2, UAl_3, UAl_4. Bis hinauf zu 70 Gew.-% Uran besteht eine Uran-Aluminium-Legierung aus der intermetallischen Verbindung UAl_4, verteilt in reinem Aluminium.

U-Th-Mischoxid unterscheidet sich in seinen Eigenschaften nicht wesentlich von denen reinen Uranoxids, deshalb wird an dieser Stelle nicht weiter darauf eingegangen.

MTR-Brennstoff

Der Kernbrennstoff, der in weitem Maße für MTR-Typ-Forschungsreaktoren eingesetzt wird, ist eine Legierung aus Al mit bis zu 26 Gew.-% hochangereichertem Uran. Nach Ausweis des Zustandsdiagramms (Abb. 21) besteht eine solche Legierung, die sich homogen schmelzen und gießen läßt, aus der intermetallischen Verbindung UAl_4, die in einem Gerüst, der sogenannten Matrix, aus reinem Aluminium suspendiert ist.

UAl_4

Wird zur Erhöhung des U-235 Gehaltes in der Brennstoffplatte ein Urananteil über 26 Gew.-% erforderlich, so treten bei diesen Legierungen gieß- und verformungstechnische Schwierigkeiten auf. Man verwendet in diesem Fall einen pulvermetallurgisch hergestellten Brennstoff aus UAl_3- und Al-Pulver (ein sogenanntes „Cermet"). Hierdurch umgeht man die genannten Schwierigkeiten und gewinnt darüber hinaus noch den Vorteil, falls erwünscht, Neutronengifte in homogener Verteilung beimischen zu können.

„Cermet"

Die Möglichkeiten der Bearbeitung unterscheiden sich nicht sehr von denen reinen Aluminiums. Besonders wichtig ist aber, daß die Strahlenschäden auf die in der Matrix verteilten Körner aus UAl_4 beschränkt bleiben, die die Spaltprodukte, die die Hauptursache für die Strahlenschädigung darstellen, zurückhalten, während die Matrix kaum beeinflußt wird. MTR-Elemente sind also ganz besonders gut strahlenbeständig bis hinauf zu hohen Abbränden. Einen solchen Brennstoff, bei dem das eigentliche spaltbare Material durch nicht spaltbares verdünnt ist, nennt man Dispersionsbrennstoff.

Hochtemperaturbrennstoff

Auch Hochtemperaturbrennstoff ist ein Dispersionsbrennstoff. Als Matrix verwendet er den gut wärmeleitenden Graphit. Hierin sind die beschichteten Partikeln verteilt, die jede für sich eine gut gasdichte Hülle besitzen (Abb. 22). Dieser Brennstoff hält ebenfalls hohen Abbränden stand. Dies ist jedoch nur dann möglich, wenn die Beschichtung der Partikeln nach genau überlegten und durch Bestrahlungsversuche erprobten Richtlinien aufgebaut wird.
Grundsätzlich braucht man zunächst eine weiche eindrückbare Kohlenstoffschicht. Sie wird pyrolytisch aus dem leicht zersetzbaren Acetylen bei etwa 1300° C abgeschieden. Sie besitzt eine Dichte von etwa 1 g/cm³. Wenn der Kern schwillt, so wird diese weiche Schicht zusammengedrückt, nimmt also die Volumenvermehrung des Kerns auf. Über diese weiche Schicht legt man die eigentliche druck- und diffusionsbeständige Schale, die aus Methan bei etwa 2000°C abgeschieden wird und eine Dichte bis zu 2g/cm³ aufweist.

UC_2-Kerne
UO_2-Kerne

Diesen Aufbau aus zwei Schichten kann man nur dann erfolgreich anwenden, wenn der Kern aus Urankarbid besteht. Daneben gewinnen aber Uranoxidkerne mehr und mehr Interesse, weil diese eine bessere Strahlenbeständigkeit versprechen. Hier würde

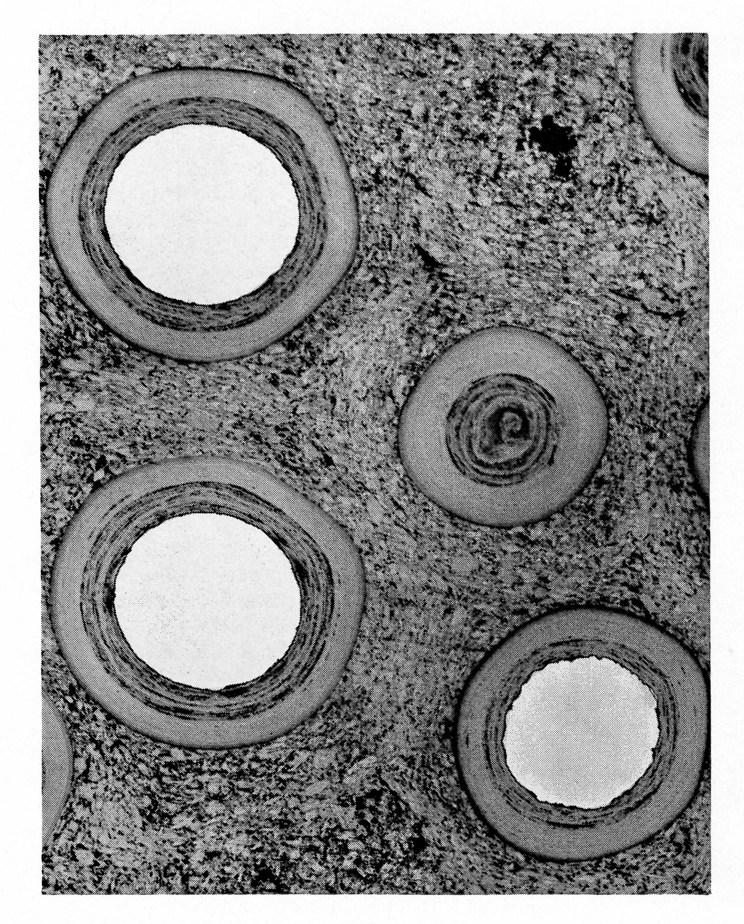


Abb. 22
Hochtemperaturbrennstoff in etwa 40facher Vergrößerung. (Der Durchmesser einer Partikel beträgt etwa 1 mm). Drei der vier sichtbaren Brennstoffpartikeln sind so geschnitten, daß der UO_2-Brennstoffkern zutage tritt (im Bild weiß). Darum zwei Schichten aus pyrolytischem Kohlenstoff. Zwischen den Partikeln die Brennstoffmatrix aus Graphit. Man erkennt deutlich in der Matrix an der ringförmigen Anordnung um jede Partikel das sogen. „overcoating“, d. h. eine vor dem Pressen aufgebrachte Schicht aus Graphit, die ein Zerdrücken der Partikeln beim Preßvorgang verhindert.
Foto: NUKEM

nun beim Aufbau der druckbeständigen Schale ab etwa 1700°C eine Reaktion zwischen dem UO_2-Kern und der Kohlenstoffschale einsetzen.

$$UO_2 + 4\,C \longrightarrow UC_2 + 2\,CO$$

Um dies zu vermeiden, bringt man bei Temperaturen, die unterhalb 1700°C liegen, durch Abscheidung aus Methan eine bereits weitgehend gasdichte Zwischenschicht an. Wenn man dann beim Aufbringen der äußeren Schicht auf 2000°C geht, setzt die Reaktion mit dem Kern zwar ein, kann aber nicht fortschreiten, weil das gebildete CO-Gas nicht entweichen kann und nach dem Massenwirkungsgesetz die Bildung von UC_2 bald zum Stillstand kommt. Eine solche dreischichtige Partikel wird z. B. bei dem in Bau befindlichen THTR-Reaktor eingesetzt.

Einen noch besseren Rückhalt der Spaltprodukte kann man bei Partikeln erwarten, die zusätzlich noch eine Schicht aus SiC besitzen. Die Partikel wird dann fünfschichtig, weil man die SiC-Schicht wegen ihrer glasähnlichen Brüchigkeit nur zwischen zwei hochdichten Graphitschichten einbauen kann. Die Abscheidung der SiC-Schicht erfolgt aus Methyltrichlorsilan.

Hüllwerkstoffe

Die Brennelementhülle übt eine mehrfache Funktion aus. Einmal soll sie den Brennstoff vor chemischem und mechanischem Angriff durch das Kühlmittel schützen. Zum anderen soll die Hülle – mit Ausnahme einiger spezieller Konzepte sogenannter „belüfteter Brennelemente“ – verhindern, daß Spaltprodukte in den Kühlkreislauf gelangen. Dies betrifft einerseits die Spaltgase, die sich innerhalb der Hülle ansammeln und hierbei beträchtliche Innendrücke bis zu mehreren hundert Atmosphären aufbauen können. Weiterhin werden aber auch feste Spaltprodukte daran gehindert, sich im Kühlmittel zu lösen oder mit diesem chemisch zu reagieren.

Daraus ergeben sich folgende Hauptanforderungen an die Hülle:

- eine möglichst geringe Neutronenabsorption,
- mechanische Stabilität gegen Innendruck (Spaltgas) und gegen den Außendruck des Kühlmittels,
- chemische Beständigkeit gegen das Kühlmittel und gegen den Brennstoff, insbesondere auch gegen die während des Abbrandes anfallenden Spaltprodukte.

Diese vielseitigen Anforderungen schränken im allgemeinen bereits die Vorauswahl geeigneter Hüllwerkstoffe beträchtlich ein.

Die gezielte Entwicklung vollständig neuer Werkstoffe für die Anforderungen im Reaktorbetrieb ist eine außerordentlich langwierige und sehr teure Angelegenheit, die nur in seltenen Fällen wirtschaftlich durchführbar ist. Ein erfolgreiches Beispiel dafür ist die Entwicklung der Zirkonlegierungen Zircaloy 2 und Zirkaloy 4. In vielen Fällen muß man sich darauf beschränken, bereits bekannte, kommerziell erhältliche Werkstoffe zu modifizieren oder zumindest hinsichtlich ihrer Herstellungskonzeptionen zu optimieren. Diesen Weg hat man beim Einsatz austenitischer Stähle und

Nickellegierungen, z. B. für die Brüterentwicklung, beschritten sowie beim Einsatz von Mg-Legierungen bei Magnox-Reaktoren.

Es genügt jedoch keineswegs, die Werkstoffauswahl nur nach den Werkstoffeigenschaften vor dem Einsatz im Reaktor zu treffen und zu spezifizieren. Die Bedingungen des Reaktorbetriebes, vor allem die Neutronenbestrahlung, manchmal auch die Betriebstemperatur oder die Korrosion im Kühlmedium, verändern die Werkstoffeigenschaften. Dies gilt in besonderem Maße für die Duktilität.

Es bedarf aber für die Werkstoffauswahl umfangreicher praktischer Erfahrungen, die oft nur aus der gründlichen Nachuntersuchung bestrahlter Brennelemente gewonnen werden können.

Zircaloy

Zirkonlegierungen haben sich heute bei den für die wirtschaftliche Stromerzeugung erprobten Wasserreaktoren als Hüllwerkstoffe für Brennstäbe durchgesetzt und bewährt. Sie weisen eine sehr geringe Absorption für thermische Neutronen auf (1/30 im Vergleich zu Stahl) und besitzen gute Korrosionsbeständigkeit und ausreichende Festigkeit bei den infrage kommenden Einsatzbedingungen von maximal 360°C und 160 atm Systemdruck. Allerdings neigen sie zur Aufnahme von Wasserstoff aus dem Kühlmedium Wasser, der einmal aus der Korrosionsreaktion

Wasserstoffaufnahme

$$Zr + 2\,H_2O \longrightarrow ZrO_2 + 2\,H_2$$

aber auch aus der radiolytischen Zusetzung des Wassers

$$2\,H_2O \longrightarrow 2\,H_2 + O_2$$

im Reaktorstrahlenfeld stammt. Dieser Wasserstoff wird bei höheren Temperaturen überwiegend im Werkstoff gelöst. Beim Abkühlen scheidet es sich aber als Zirkonhydrid im Legierungsgefüge aus und kann dort erhebliche Beeinträchtigungen der mechanischen Eigenschaften bewirken, insbesondere eine Verringerung der Duktilität.

Für die Einhaltung der geforderten Duktilität trotz Hydridbildung sowie für die Beherrschung der Langzeit-Festigkeitseigenschaften, insbesondere des sogenannten Kriechdehnens bei Betriebstemperaturen unter mechanischer Spannung, spielt die Orientierung der einzelnen Metallkristallite im Hüllrohr eine bedeutende Rolle. Diese Orientierung hängt wiederum vom Herstellungsverfahren des Hüllrohres ab. Aus diesem Grunde wird z. B. die sogenannte Hydridorientierung spezifiziert, die über Hydriertests Aufschluß über die Gefügeorientierung des Werkstoffes erlaubt.

Die heute technisch am besten erprobten Zirkonlegierungen sind Zircaloy-2 (mit 1,5 % Sn; 0,15 % Fe; 0,1 % Cr; 0,05 % Ni) und Zircaloy-4 (mit 0,5 % Sn; 0,2 % Fe; 0,1 % Cr; 0,007 % Ni), wobei Zircaloy-4 eine geringere Wasserstoffaufnahme bei nicht wesentlich erhöhter Korrosionsgeschwindigkeit aufweist.

Stähle und Ni-Legierungen

Austenitische Stähle und Nickellegierungen sind heute die aussichtsreichsten Hüllwerkstoffe für Einsatztemperaturen zwischen

400° C und 800° C, wobei der zur Zeit technisch wichtigste Bereich zwischen 600 und 750°C liegt. Sie werden deshalb besonders für die gasgekühlten Reaktoren mit oxidischem Brennstoff eingesetzt, also z. B. bei den Fortgeschrittenen Gasgekühlten Reaktoren FGR und beim KKN-Reaktor in Niederaichbach. Man benutzt sie aber auch bei dampfgekühlten Reaktoren, so im Heißdampfreaktor HDR in Kahl. Diese Legierungen weisen im thermischen Energiebereich eine wesentlich ungünstigere Neutronenabsorption als Zirkonlegierungen auf. Jedoch überwiegen die Vorteile der Einsetzbarkeit bei höheren Temperaturen, da Zirkonlegierungen heute oberhalb 400°C nicht mehr technisch zuverlässig verwendet werden können. Auch im harten Neutronenspektrum von schnellen Reaktoren sind die Verluste durch Neutronenabsorption bei austenitischen Legierungen nicht unbeträchtlich, insbesondere nehmen sie mit steigendem Nickelgehalt zu. Dies bedeutet einen nicht vernachlässigbaren Nachteil für die in der übrigen Technik heute mit großem Erfolg eingesetzten hochwarmfesten Nickelbasislegierungen im Vergleich zu den austenitischen Cr/Ni-Legierungen.

Hochtemperaturversprödung

Ein schwerwiegendes Problem für den Einsatz austenitischer Stähle und Nickellegierungen stellt die Hochtemperaturversprödung dar, die gerade im technisch interessanten Bereich ab 600° einsetzt. Im Gegensatz zur bekannten Störung der Metallgitter durch Bestrahlung bei niedrigen Temperaturen, die bei höheren Temperaturen wieder „ausheilen“, handelt es sich bei der Hochtemperaturversprödung um einen irreversiblen Prozeß, der im wesentlichen durch stoffliche Umwandlungen und Phasenumwandlungen im Werkstoffgefüge hervorgerufen wird. Hierzu gehört vor allem die Bildung von He durch eine (n, α)-Kernreaktion mit dem in Spuren in diesen Werkstoffen immer vorhandenen Bor. Aber auch die bevorzugte Bildung von Phasenausscheidungen unter Bestrahlung kann die mechanischen Eigenschaften, insbesondere die Duktilität stark beeinträchtigen.

Schwellen von Stahl

Der Übergang zu immer höheren Neutronenflüssen und damit höheren Neutronenbestrahlungsdosen auf die Hüllwerkstoffe hat bei austenitischen Legierungen noch ein weiteres Problem erkennen lassen: bei Neutronendosen über 10^{22} n/cm^2 bilden sich im Werkstoffgefüge Poren, die zu einem Schwellen führen. Als Ursache hierfür wird die Kondensation von durch die Neutronenbestrahlung hervorgerufenen Gitterdefekten zu kleinen Bläschen angesehen, wobei wahrscheinlich das im Gefüge durch die Bestrahlung anfallende Helium die Keimbildung für solche Blasen fördert. Nach dem bis heute vorliegenden experimentellen Material hat dieser Schwelleffekt ein Maximum im Temperaturbereich von 450–500° C. Die höchsten gemessenen Schwellwerte betrugen in Einzelfällen bis zu 7 % des Anfangsvolumens nach 10^{23} n/cm^2. Eine Sättigung dieses Effektes bei weiter steigender Bestrahlungs-

dosis wird aufgrund theoretischer Extrapolationen bei maximal 12 bis 14 % Volumenzunahme erwartet.

Die Korrosionsbeständigkeit dieser Legierungen gegenüber dem Kühlmittel ist im heute infrage kommenden Temperaturbereich meistens befriedigend. In flüssigem Natrium weisen die Eisenbasislegierungen, im Dampf die Nickelbasislegierungen die besten Werte auf.

Chemische Wechselwirkung Hülle – Brennstoff

Eine chemische Wechselwirkung mit dem oxidischen Brennstoff tritt bei niedrigen Abbränden nicht auf. Bei höheren Abbränden macht sich allerdings ein mit zunehmendem Abbrand wachsender Einfluß der Spaltprodukte bemerkbar, der bei Hüllrohrinnentemperaturen über 600°C zu erheblichen lokalen Angriffen führen kann und unter Umständen die Lebensdauer der Brennelemente begrenzt.

Für Hochleistungsbrüter wird heute zunehmend der Einsatz von karbidischem Brennstoff diskutiert. Hiermit stellt sich das Problem der chemischen Wechselwirkung mit der Hülle in verschärfter Form, da im allgemeinen die chemisch-thermodynamischen Voraussetzungen eine Aufkohlung der Hülle möglich erscheinen lassen. Darunter ist eine Zunahme des Kohlenstoffgehaltes im Werkstoff zu verstehen, die zur Ausscheidung von Metallkarbiden im Werkstoff führt, was wiederum die mechanischen Eigenschaften beeinträchtigen kann.
Die heute technisch wichtigsten Werkstoffe dieser Kategorie sind:

auf Eisenbasis

18/10 – Cr/Ni-Stähle 16/13 – Cr/Ni-Stähle	} nach deutschen und amerikanischen Normen
15/15 – Cr/Ni-Stahl	mit Bor- und Ti-Zusatz (12R72 HV aus Schweden)
20/25 – Cr/Ni-Stahl	z. B. R-35 aus England
20/30 – Cr/Ni-Stahl	bekannt als Incoloy 800

auf Ni-Basis

Inconel 625	(20 Cr, 9 Mo, 4 Nb)
Hastelloy X	(20 Cr, 9 Mo)

Magnox

Magnox-Reaktoren, also graphitmoderierte, gasgekühlte Reaktoren arbeiten mit natürlichem Uranmetall als Brennstoff bei Hüllrohrtemperaturen, die 400°C überschreiten. Hierbei würden zwischen Uranmetall und vielen Metallen bereits merkbare Reaktionen eintreten, die die Auswahl möglicher Hüllmaterialien stark einschränken. Magnesium macht hier eine Ausnahme. Obwohl auch dieses Metall mit vielen anderen Metallen unter Bildung niedrigschmelzender Legierungen reagiert, bleibt eine Reaktion mit Uran fast völlig aus. Es kommt hinzu, daß Magnesium Neutronen nur wenig absorbiert, noch um den Faktor 3 weniger als Zirkon.

Bekanntlich ist Magnesium ein Metall, das leicht brennt, d. h. mit Luft unter Bildung des Oxids reagiert. Auch in heißem CO_2, dem Kühlmittel der Magnox-Reaktoren, setzt bei höheren Temperaturen eine Reaktion ein. Diese Anfälligkeit gegen oxidierende Gase läßt sich durch Zusatz ganz bestimmter Legierungselemente stark herabdrücken. Besonders wirksam sind geringe Zusätze an Beryllium. Die so gewonnenen Legierungen werden Magnox genannt (Magnesium non oxidizing). Sie haben folgende Zusammensetzung:

Al	0,5 – 1	Gew.-%
Be	0,05 – 0,1	"
Ca	0,1 – 0,2	"
Mg	Rest	

Eine Magnox-Legierung läßt sich z. B. an Luft bis fast zum Schmelzpunkt erhitzen, ohne daß Entzündung einsetzt. Der Grund für diese Schutzwirkung liegt wohl darin, daß sich die Oberflächenschichten aus Oxid oder aus $MgCO_3$ in Gegenwart der Legierungszusätze nicht abheben, sondern als dichte Schutzschichten erhalten bleiben.

Magnox läßt sich leicht schweißen. Man hat jedoch häufig Risse in der Schweißnaht beobachtet, die sich durch Senkung des Ca-Gehaltes vermeiden lassen.

Aluminium

Die Einsatzmöglichkeit von Aluminium ist begrenzt, weil dieses Metall nur sehr wenig korrosionsbeständig ist. Eine Ausnahme ist nur bei Forschungsreaktoren vom MTR-Typ gegeben. Hier verwendet man Al für die Brennstoffplatten und auch für die sonstigen Strukturteile des Elementes. Reaktoren des erwähnten Typs bleiben meist mit der Kühlwassertemperatur unterhalb 100°C; hier läßt sich Aluminium noch gut anwenden. Auch das Problem der Verträglichkeit mit dem Brennstoff stellt sich hier nicht, da dieser in den meisten Fällen aus der Dispersion UAl_3 oder UAl_4 in Aluminium besteht. Schließlich ist auch die Absorption von Neutronen günstig; sie ist etwas stärker als bei Zirkon und etwa vier mal größer als bei Magnesium.
Als Deckbleche der Platten, d. h. als Hüllmaterial wird in den meisten Fällen reines Aluminium mit Al-Gehalten von 99,5 bis 99,85 % benutzt. Für alle anderen Teile des Elements nimmt man gern festere Legierungen, meist vom Typ AlMgSi mit 0,3 bis 1,4 % Mg und 0,3 bis 0,7 % Si.

Hochflußreaktoren, z. B. der RHF, wenden höhere Kühlmitteltemperaturen an. Die Platten werden hier bis über 150° C heiß. Eine korrosionsbeständigere Legierung ist hier angezeigt. Die sehr hohe Geschwindigkeit, mit der das Kühlwasser die Elemente durchströmt, verlangt außerdem nach höheren Festigkeiten als reines Aluminium sie besitzt. In dem speziellen Fall des RHF benutzt man als Hüllmaterial deshalb Legierungen vom Typ AlFeNiMg mit je etwa 1 % Fe, Ni und Mg.

Graphit

Typisch beim Hochtemperaturelement ist die Verwendung beschichteter Partikeln in einer Graphitmatrix, nach außen meist

umgeben von einer brennstofffreien Schale. Die Hülle bei Hochtemperaturelementen, die die Spaltprodukte zurückhalten soll, ist also dreigeteilt. Jeder der 3 Teile (Beschichtung, Matrix und Schale) übernimmt einen Teil dieser Aufgabe.

Diese drei Kohlenstoffsorten sind unterschiedlich in der Methode ihrer Herstellung, im Strukturaufbau und in den Eigenschaften. Elektrographit und auch natürlicher Graphit weisen eine Struktur auf, die erst nach einer Temperaturbehandlung bis hinauf zu 2500-3000°C (Graphitierungstemperatur) entsteht. Die Abscheidung von Pyrokohlenstoff aus Kohlenwasserstoffgasen erfolgt dagegen bei Temperaturen unterhalb 2000°C. Die Graphitmatrix schließlich wird aus mehreren Komponenten (etwa Elektrographit- und Naturgraphitpulver) unter Zusatz eines organischen Binders hergestellt. Nach dem Pressen wird der Formkörper zum Verkoken des Binders und zur Entgasung und Strukturverbesserung bis auf 1800°C erhitzt. Der Kohlenstoff der Matrix besitzt also einen gewissen, meist kleinen Anteil, der nicht die Struktur des Graphits aufweist.

Graphit ist ein keramischer Werkstoff. Als solcher enthält er einen bestimmten Anteil Poren, ist also nicht gasdicht. Nur Pyrokohlenstoff kann bei richtiger Herstellung gasdicht sein, die Graphitmatrix und die äußere Graphithülle sind es nicht. Eine beschichtete Partikel hält also die Spaltgase zurück, die im Inneren Drücke von 100 atm. und mehr aufbauen können.

Im Vergleich zu metallischen Hüllen oxidischer Elemente befindet sich Hochtemperaturbrennstoff auf wesentlich höheren Temperaturen, die bei dem THTR bis 1050°C an der Oberfläche und 1250° C im Innern der Partikeln betragen können. Hierbei können Spaltprodukte diffundieren. Die Diffusion durch die gasdichten Schichten der Partikel ist eine normale Festkörperdiffusion. Graphitmatrix und äußere Zone enthalten dagegen Poren. Der Mechanismus der Diffusion ist hier ein anderer, sie erfolgt rascher für gasförmige Spaltprodukte, aber wegen der größeren inneren Oberfläche langsamer für einige feste Spaltprodukte. Immerhin haben diese beiden Zonen ein nennenswertes Rückhaltevermögen für Spaltprodukte. Eine Verseuchung des Kühlkreislaufes in nennenswertem Maße tritt wie bei anderen Elementen nur dann ein, wenn Hüllenschäden vorliegen, und zwar besonders, wenn Partikelschalen defekt sind. Dies kann durch Fehler bei der Herstellung oder aber durch Strahlenschäden erfolgen.

Die drei Kohlenstoffsorten verhalten sich bei der Bestrahlung unterschiedlich, da die Struktur und der Graphitierungsgrad von großem Einfluß sind. Generell kann man jedoch sagen, daß zunächst ein Schrumpfen und mit steigender Neutronenbestrahlung schließlich ein Schwellen stattfindet. Dabei ist die Längenänderung in den diversen Raumrichtungen verschieden und bei anisotropem Material erheblich größer als bei relativ isotropem Material. Man versucht deshalb mit steigendem Erfolg, Beschichtung und Gra-

phitmatrix sowie den für Strukturrohre verwendeten Elektrographit möglichst isotrop herzustellen.

Strukturwerkstoffe

Neben dem Brennstoff und dem Hüllmaterial finden noch andere Werkstoffe beim Brennelement Verwendung, die man summarisch als Strukturwerkstoffe bezeichnet. Es handelt sich hierbei um die Werkstoffe des Elementskelettes, also insbesondere die Abstandshalter, die Kopf- und Fußstücke und den Kasten für Kühlwasserführung, der aber nur bei Siedewasserreaktoren und Schnellen Brütern noch vorhanden bzw. ein Teil des Brennelementes ist.

Besonders den Abstandshaltern kommt hierbei eine besondere Bedeutung zu. Sie haben die Aufgabe, die Brennstäbe während der ganzen Einsatzzeit des Brennelementes, also mehrere Jahre lang, genau zu positionieren und zu verhindern, daß der minimal zulässige Stababstand nicht unterschritten wird. Sie arbeiten bei den Wasserreaktoren mit Federn. Bei höheren Temperaturen, also besonders für Brutreaktoren, muß man jedoch ohne Federn auskommen, da keine geeigneten Federwerkstoffe zur Verfügung stehen.
Die Anforderungen an diese Materialien sind denen an die Hüllrohre sehr ähnlich. Sie müssen

- eine möglichst geringe Neutronenabsorption aufweisen,
- eine ausreichende Festigkeit und Duktilität aufweisen, auch unter Berücksichtigung der Strahlenschäden,
- genügend korrosionsbeständig sein gegenüber der Einwirkung des Kühlmittels.

Im folgenden wird die Betrachtung auf die Strukturteile von Wasserreaktoren und Brutreaktoren beschränkt, weil andere Elementtypen gegenüber dem, was unter dem Kapitel Hüllwerkstoffe gesagt wurde, nichts grundsätzlich Neues aufweisen.

Zircaloy-Abstandshalter

Bei Wasserreaktoren ist es ein Grundprinzip, alle Strukturteile aus Zircaloy zu fertigen, solange dies ökonomisch vertretbar ist. So bemüht man sich seit vielen Jahren um einen ganz aus Zircaloy bestehenden Abstandshalter. Wegen der nicht ausreichenden Federwirkung des Zircaloy ist das bisher nicht gelungen, so daß man die Federn immer noch aus einem stärker neutronenabsorbierenden Material herstellen muß, meist aus Inconel-718 und -750. Diese Federn drücken die Zircaloy-Brennstäbe in die Abstandshalter und verhindern ein Vibrieren, das durch laufende Zerstörung des schützenden Oxidfilms die Hülle beschädigen würde (sog. Reiboxidation).

Bei Stahlhüllrohren (FGR, KKN, KNK, Brüter) kann man auf eine Feder meist verzichten und begnügt sich mit einer losen Führung der Brennstäbe im starren Abstandshalter.

Bei Kopf- und Fußstücken für Elemente thermischer Reaktoren, die meist kompakte Gußteile sind, lohnt sich eine Fertigung aus Zircaloy nicht. Man benutzt hier austenitische Cr/Ni-Stähle nor-

maler Zusammensetzung. Hieraus sind auch die Endstücke der Elemente für den Schnellen Brüter gefertigt.

An die Kühlmittel-Führungskästen bei Siedewasserreaktoren und Na-gekühlten Schnellen Brütern werden hohe Anforderungen bezüglich Festigkeit und Verbiegen gestellt. Es handelt sich hier um Präzisionsvierkantrohre aus Zircaloy bzw. Sechskantrohre aus rostfreiem Stahl.

3.2 Herstellung von Elementen mit Uranoxid

F. Plöger, G. Schneider, R. Schwarzwälder

3.2.1 Brennstoffherstellung

$UF_6 \rightarrow UO_2$

Als Ausgangsmaterial der Brennstoffherstellung dient bei der Verwendung von angereichertem Uran überwiegend Uranhexafluorid (UF_6), das die Isotopentrennanlagen in einem an U-235 angereichertem Zustand liefern. Für Leichtwasser- und Fortgeschrittene Gasgekühlte Reaktoren werden z. Z. Uranbrennstoffe mit schwacher Anreicherung bis ca. 3 % U-235 – gelegentlich etwas höher – benötigt.

Uranhexafluorid ist, wie schon gesagt, die einzige schon bei Raumtemperatur erheblich flüchtige binäre Uranverbindung (Sublimationspunkt 760 mm Hg, 56,4°C; Tripelpunkt 1137,5 mm Hg, 64,02°C), die deshalb leicht sehr rein darstellbar ist und allen Reinheitsforderungen genügt.

Bei der Verarbeitung von Uranhexafluorid entstehen – unabhängig vom gewählten Verfahren – fluorhaltige Produkte: durch Hydrolyse entstandene Flußsäure, Fluorwasserstoff oder Ammoniumfluorid. Eine Korrosion dieser Produkte mit den Apparateteilen muß möglichst vermieden werden, um die Reinheit des UF_6 zu erhalten.

Ein anderes mögliches Ausgangsmaterial für die Brennstoffherstellung sind Uranylnitratlösungen ($UO_2(NO_3)_2$), die bei der Wiederaufbereitung bestrahlter Brennelemente als reine von Plutonium abgetrennte Lösungen anfallen. Außerdem durchläuft auch ein Teil des in Brennstoff- und Brennelementanlagen anfallenden Rücklaufmaterials (Abfall und Ausschuß) die Stufe der Uranylnitratlösung, gegebenenfalls nach vorheriger Reinigung durch eine flüssig/flüssig Extraktion.

Von zahlreichen möglichen Verfahren erfolgt in Deutschland die Verarbeitung von UF_6 bzw. $UO_2(NO_3)_2$-Lösung zu UO_2 über eine naßchemische Umsetzung des Urans als Ammoniumuranylkarbonat (= AUC, $(NH_4)_4[UO_2(CO_3)_3]$). Dazu wird das normalerweise in großen Behältern (Durchmesser etwa 750 mm) (Abb. 23) mit jeweils ca. 1,5 t U-Inhalt angelieferte Uranhexafluorid in ein Ausdampfgefäß überführt, in dem es auch bei Bruch oder Leckagen am Behälter sicher ausgetrieben werden kann.

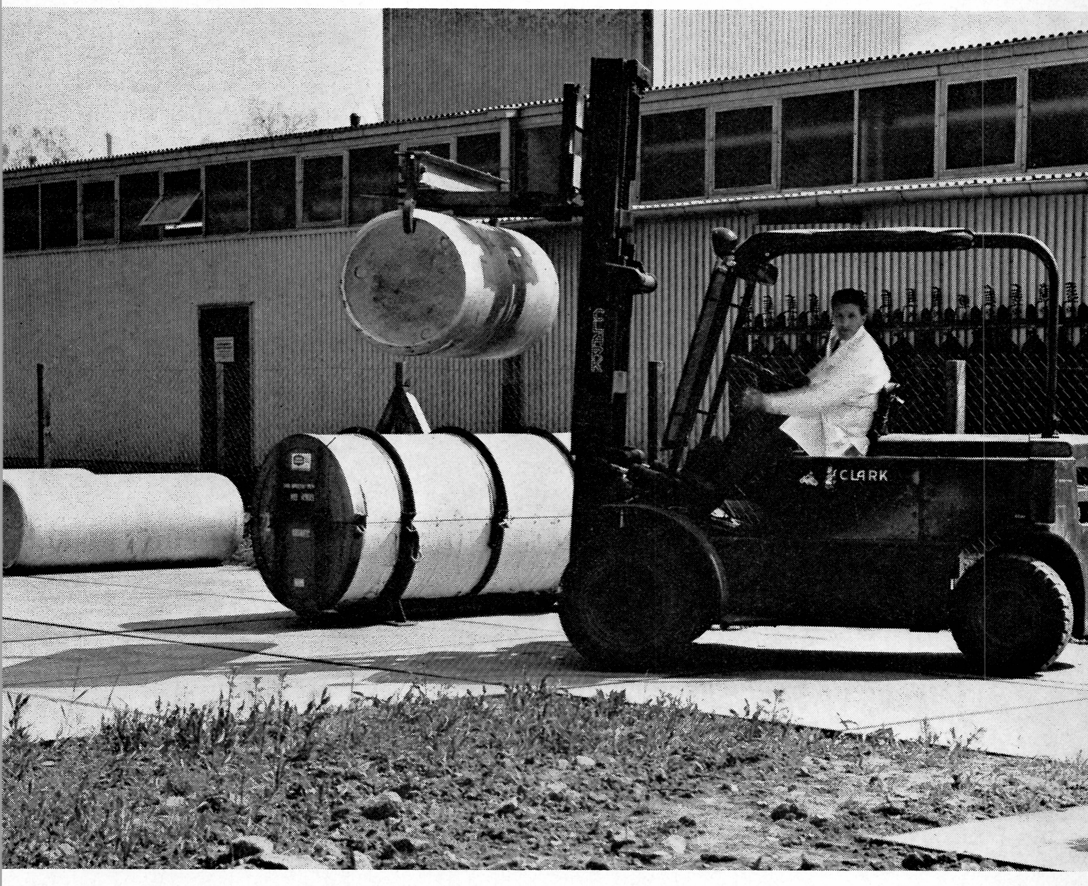


Abb. 23 Am Gabelstapler ein inneres Transportgefäß zum Transport von angereichertem UF_6. Durchmesser etwa 75 cm, Inhalt etwa 2,3 t UF_6. Darunter ein Transportbehälter mit Außenbehälter (siehe hierzu auch Kap. 4). Foto: RBG

Eine Wasserdampfheizung erwärmt den Behälter mit Inhalt auf ca. 100°C. Unter diesen Bedingungen steht das flüssige UF_6 unter einem Dampfdruck von 3,2 atü. Das verdampfte UF_6 passiert geheizte Rohrleitungen und tritt dann durch Düsen in eine kombinierte Hydrolysen- und Fällungsapparatur ein, in die gleichzeitig die für die Ausfällung des Urans notwendigen Komponenten NH_3 und CO_2 eingeleitet werden (Abb. 24). Im Reaktionsgefäß wird die wäßrige Suspension ständig umgepumpt, bis die ge-

samte für die Umsetzung vorgesehene Menge UF_6 eingeleitet und das Uran als AUC praktisch quantitativ ausgefällt ist.

Das mikrokristalline Fällprodukt läßt sich auf einer Vakuum-Nutsche (Abb. 25) ausgezeichnet filtrieren und durch Aufsprühen einer gesättigten Ammoniumkarbonatlösung leicht waschen. Die AUC-Niederschläge zeichnen sich durch geringe Fluorgehalte aus

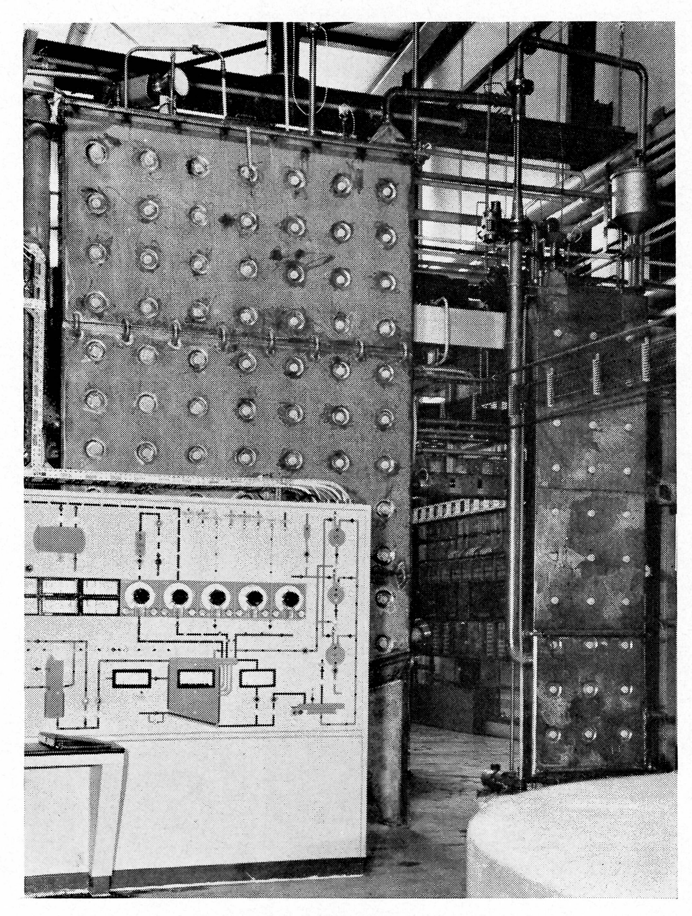


Abb. 24 Hydrolysen- und Fällapparatur, in der aus UF_6 das Uran als Carbonatkomplex AUC gefällt wird. Hinter dem Schaltschrank und rechts im Bild sind Reaktionsgefäße sichtbar, die aus Kritikalitätsgründen die Form einer flachen Scheibe haben.
Foto: RBG

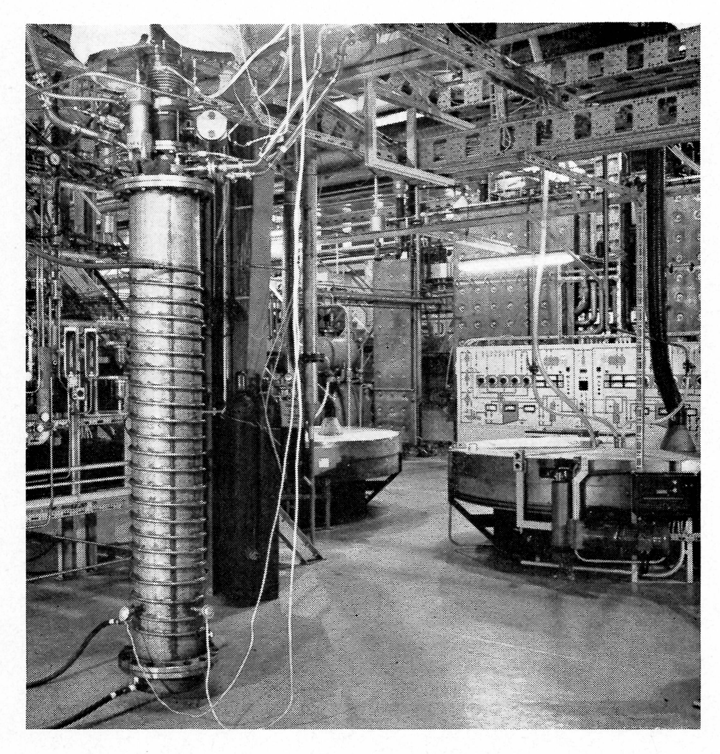


Abb. 25 In der Mitte und rechts zwei Vakuumdrehfilter, auf denen der AUC-Niederschlag weitgehend von anhaftendem Wasser befreit wird. Das gelbe Uransalz wird dann zur Umwandlung in UO_2 pneumatisch in Wirbelöfen gefördert, von denen links oben einer in seinem unteren Teil sichtbar ist. Darunter das gekühlte Gefäß, in das das UO_2-Pulver abgelassen wird.
Foto: RBG

– meist weniger als 0,05 % F. Die Filtrate enthalten nur 0,05 % des durchgesetzten Urans.

Vom Filter wird der Niederschlag mit 2-6 % anhaftendem Wasser pneumatisch in einen Wirbelbettofen eingetragen. Als Trägergas im Ofen dienen Wasserdampf und Wasserstoff. Die Umsetzung zu UO_2-Pulver erfolgt somit ohne vorheriges Trocknen oder Kalzinieren des Niederschlags. Sie wird im Wirbelbett bei Temperaturen um 550°C ausgeführt. Vor dem Entleeren der Wirbelbettöfen wird die gesamte Pulvermenge geringfügig anoxidiert, um das Pulver für die Weiterverarbeitung zu stabilisieren. Sofern die

Pulvermengen hinreichend groß sind, erfolgt anschließend eine Homogenisierung im 2 t-Maßstab.

Eigenschaften UO_2

Im Vordergrund des Interesses steht die Eignung des Pulvers in bezug auf seine Verarbeitung zu Sinterkörpern. Allgemein hat sich zur Beurteilung der Pulverqualität der „Performance Test“ durchgesetzt. Hierzu wird eine kleine Menge eines Pulverloses unter Standardbedingungen zu Sinterkörpern verarbeitet. Daneben werden aber auch kennzeichnende Eigenschaften zur Qualitätsbeurteilung herangezogen. Es sind dies Pulveroberflächenbestimmungen nach BET (**B**runauer, **E**mmet, **T**eller); Schütt- und evtl. auch Rütteldichte der Pulver; die Überstöchiometrie, dargestellt als O:U-Verhältnis, etc.

Die laufende Kontrolle dieser Eigenschaften vermittelt dann einen Überblick über die für die Weiterverarbeitung notwendige Gleichmäßigkeit der Pulver. Die Reinheit des Pulvers ist aus der in Tab. 7 wiedergegebenen „typischen Analyse“ ersichtlich.

Pellet-Herstellung

Die Herstellung von UO_2-Sinterkörpern (= pellets) kann nach verschiedenen Verfahren durchgeführt werden, Pulver mit nicht ausreichender Rieselfähigkeit machen dabei zusätzliche Verfahrensschritte notwendig, um die erforderliche Rieselfähigkeit zu erreichen. So wird z. B. häufig ein Verfahren angewandt, bei dem UO_2-Pulver mit Luftstrahlmühlen aufgemahlen wird, um nach Vorkompaktierung, Brechen und Sieben ein gut rieselndes Granulat zu erhalten. Das nach dem AUC-Verfahren hergestellte UO_2-Pulver hat diese Vorbehandlung nicht nötig. Seine besonderen Pulvereigenschaften, insbesondere seine gute Rieselfähigkeit, erlauben es, das Pulver ohne Vorbehandlung und Hilfsmittelzusätze direkt zu Pellets zu verpressen. Auf speziell dafür einge-

Tab. 7: „Typische Analyse“ des UO_2-Pulvers (Angaben in ppm)

Ag	0,11	Fe	17
Al	8	Mg	0,5
B	< 0,08	Mn	< 1
C	120	Mo	< 1
Ca	< 20	N	3
Cd	< 0,07	Na	< 20
Cl	5	Ni	< 10
Co	1	Pb	1
Cr	< 3	Si	17
Cu	< 0,3	Sn	< 5
F	70	Zn	< 20

(1 ppm = 1 part per million = 10^{-4} %)

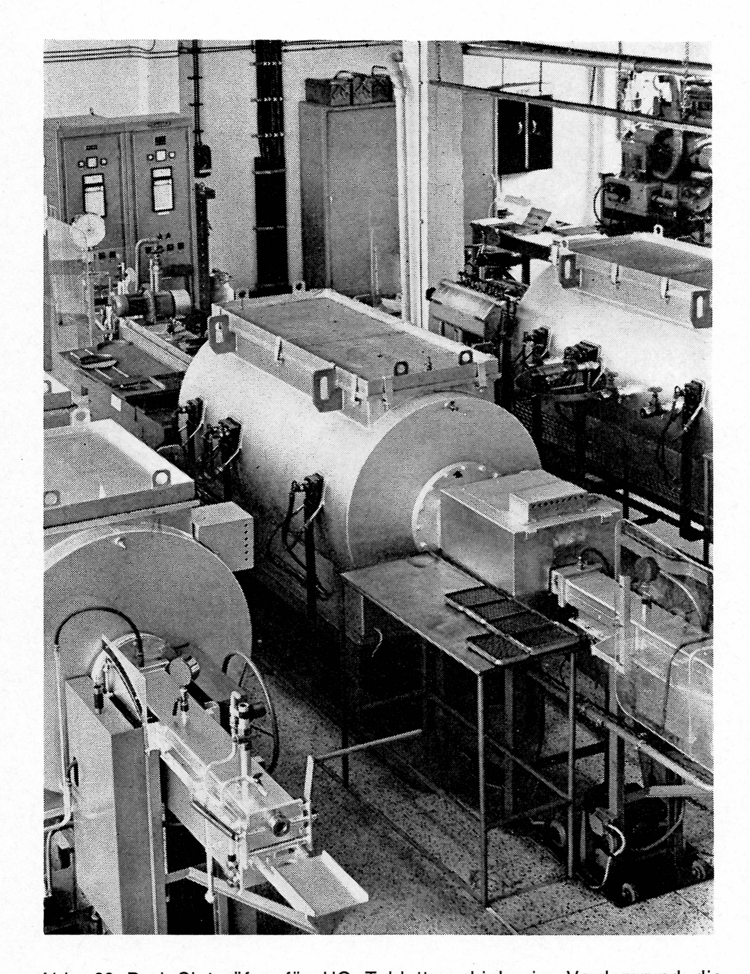


Abb. 26 Drei Sinteröfen für UO_2-Tabletten. Links im Vordergrund die Beschickungsseite eines Ofens. Hier werden in bestimmten zeitlichen Abständen Molybdänkästchen mit den UO_2-Grünlingen eingeschoben (rechts daneben sichtbar). Sie durchlaufen in mehreren Stunden den Ofen, kommen zunächst in eine Vorheizzone, bleiben dann etwa einige Stunden in der Sinterzone bei etwa 1600° C und kühlen dahinter ab. Der Ofen steht unter Wasserstoff, um überstöchiometrischen Sauerstoff aus dem UO_2 zu entfernen.
Foto: RBG

richteten mechanischen oder hydraulischen Pressen werden in ausreichend schnellen Taktzeiten Preßkörper (sog. Grünlinge) mit den notwendigen Dichten hergestellt, die durch den Sintervorgang auf die gewünschte Dichte schrumpfen. Hier ist freilich ergänzend zu sagen, daß die Entscheidung über das jeweils für den einzelnen Brennelementhersteller günstigste Pellettisierungsverfahren nicht nur von der Rieselfähigkeit des UO_2-Pulvers abhängt, sondern auch von anderen technischen oder kommerziellen Faktoren.

Grünlinge

Sinterung

Die Grünlinge durchlaufen einen kontinuierlich arbeitenden mit Molybdän-Heizleitern bestückten Sinterofen (Abb. 26). Gesintert wird in Wasserstoff bei Temperaturen um 1600°C. Die Aufenthaltszeit der Tabletten in der Hochtemperaturzone des Ofens beträgt ca. 2-3 Stunden. Bei üblichen Durchmessertoleranzforderungen von etwa ± 10 bis ± 25 μm schließt sich ein Schleifprozeß auf spitzenlosen Rundschleifmaschinen an. Die Pellets werden nach dem Schleifvorgang kontinuierlich gewaschen und getrocknet, schadhafte Pellets werden gleichzeitig ausgelesen. Die Sinterkörper werden nach Fertigstellung einer Reihe von Prüfungen unterworfen, um sicherzustellen, daß nur einwandfreie, den Spezifikationen entsprechende Pellets in die Brennstäbe gelan-

Schleifen

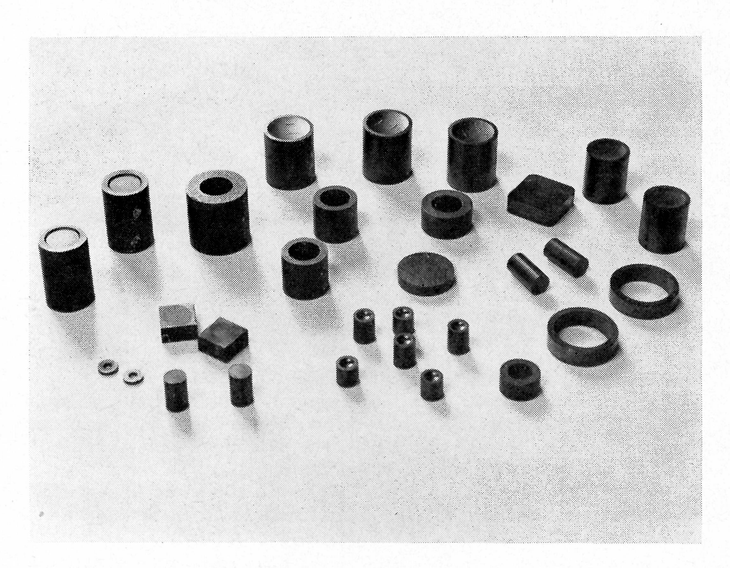


Abb. 27 Eine Auswahl von mit dem Sinterprozeß herstellbaren Formen von UO_2-Sinterkörpern. Durchmesser der am oberen Bildrand sichtbaren Pellets etwa 13 mm.
Foto: RBG

gen. Diese Prüfungen umfassen chemische und physikalische Kontrollen. Zu der ersteren gehören Prüfungen auf Reinheit, Urangehalt, Verhältnis O/U; zu den physikalischen Kontrollen die Messung des Feuchtigkeitsgehaltes, der Dichte und der Abmessungen sowie eine stichprobenweise Prüfung der Mikrostruktur durch Anfertigung von Schliffen. Einige mögliche, durch Sintern hergestellte UO_2 Tabletten zeigt Abb. 27. Abb. 28 bringt nochmals ein Fließschema der Herstellung von UO_2-Sinterkörpern aus UF_6.

Pellet-prüfungen

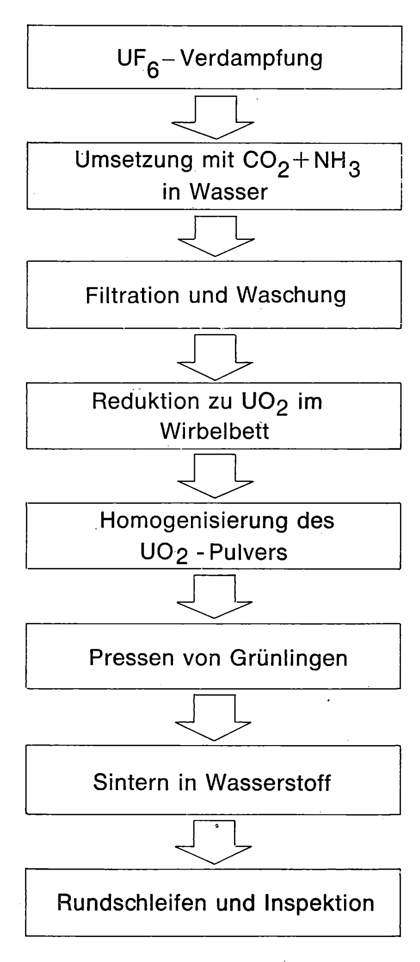


Abb. 28 Fließschema der Herstellung von UO_2-Sinterkörpern aus UF_6.

3.2.2 Hüllrohrherstellung

Zircaloy-Hüllrohre An dieser Stelle wird nur die Herstellung von Hüllrohren aus Zircaloy beschrieben. Hierzu geht man von zweifach im Lichtbogenofen geschmolzenen und anschließend geschmiedeten Bolzen aus, deren Oberflächen sorgfältig überdreht bzw. gebohrt werden.

Die Weiterverarbeitung durch Warmpressen bei ca. 700°C zu rohrförmigen Rohlingen erfolgt erst, wenn die chemische Analyse auf Legierungselemente und bestimmte Verunreinigungen den spezifizierten bzw. limitierten Werten entspricht und die Oberflächengüte für gut befunden wurde.

Aus den Rohlingen werden die Hüllrohre bis zu ihren endgültigen Abmessungen durch stufenweise Kaltverformungen mit Zwischenglühungen hergestellt. Am häufigsten wendet man das **Pilgerwalzverfahren** Pilgerwalzverfahren mit 60 bis 70 %igen Querschnittsreduktionen pro Durchgang an. Je nach Innendurchmesser- bzw. Wanddicken-Reduktion erreicht man dabei verschiedene mechanische Eigenschaften. Das gilt besonders für die letzte Verformungsstufe: Durch ein bestimmtes Verhältnis der beiden Reduktionsmechanismen zueinander kann eine solche Bearbeitungstextur erzeugt werden, daß sich die im Wasserdampfkorrosionstest und während des Reaktorbetriebes entstehenden Zirkonhydridnadeln vorwiegend tangential zur Rohrwand ausscheiden. Andere wichtige mechanische Eigenschaften werden durch die Art der nach dem letzten Verformungsschritt sich anschließenden Spannungsfreiglühung erreicht. Die Temperatur und Dauer dieser Abschlußglühung liegt meistens unterhalb der Rekristallisationsbedingungen, so daß die beim letzten Arbeitsgang aufgeprägten Deformationsstrukturen weitgehend erhalten bleiben. – Alle Wärmebehandlungen müssen im Hochvakuum mit zuvor sorgfältig gereinigten Rohren vorgenommen werden.

Oberflächenbehandlung Der abschließende Schritt ist eine Oberflächenbehandlung. Diese richtet sich nach der weiteren Verarbeitungsweise bei der Brennstabfertigung. Wenn die Hüllrohre später im Wasserdampf oxidiert werden, darf der Rohrhersteller ein abschließendes Beizen in einer HF/HNO_3-Lösung vornehmen, um eine saubere, metallisch glänzende und glatte Oberfläche zu erhalten. Wenn die Hüllrohre aber nicht oxidiert zu Stäben und Brennelementen montiert und in diesem metallischen Oberflächenzustand im Reakor eingesetzt werden sollen, darf der Rohrhersteller keine Abschlußbeizung vornehmen. Zulässig ist das Sandstrahlen der inneren Rohroberfläche mit SiC-Pulver und das Schleifen der äußeren Oberfläche.

3.2.3 Brennstab-Herstellung

Einfüllen der Pellets Die Pellets werden auf einer Meßschiene unter Benutzung gesondert hergestellter Ausgleichspellets verschiedener Länge auf die vorgeschriebene Längentoleranz vorgelegt. Jede für die Füllung

eines Brennstabes vorgesehene Pelletsäule wird zunächst gewogen und dann entweder

a) direkt von der Vorlegeschiene in das Hüllrohr eingeschoben
b) in Magazine geladen, die ihrerseits in eine kombinierte Lade- und Schweißstation einchargiert werden.

Im Falle a) sind die Vorlegeschiene und die Waage für die Pelletsäule als Ladestation ausgebildet, und es wird das zu ladende

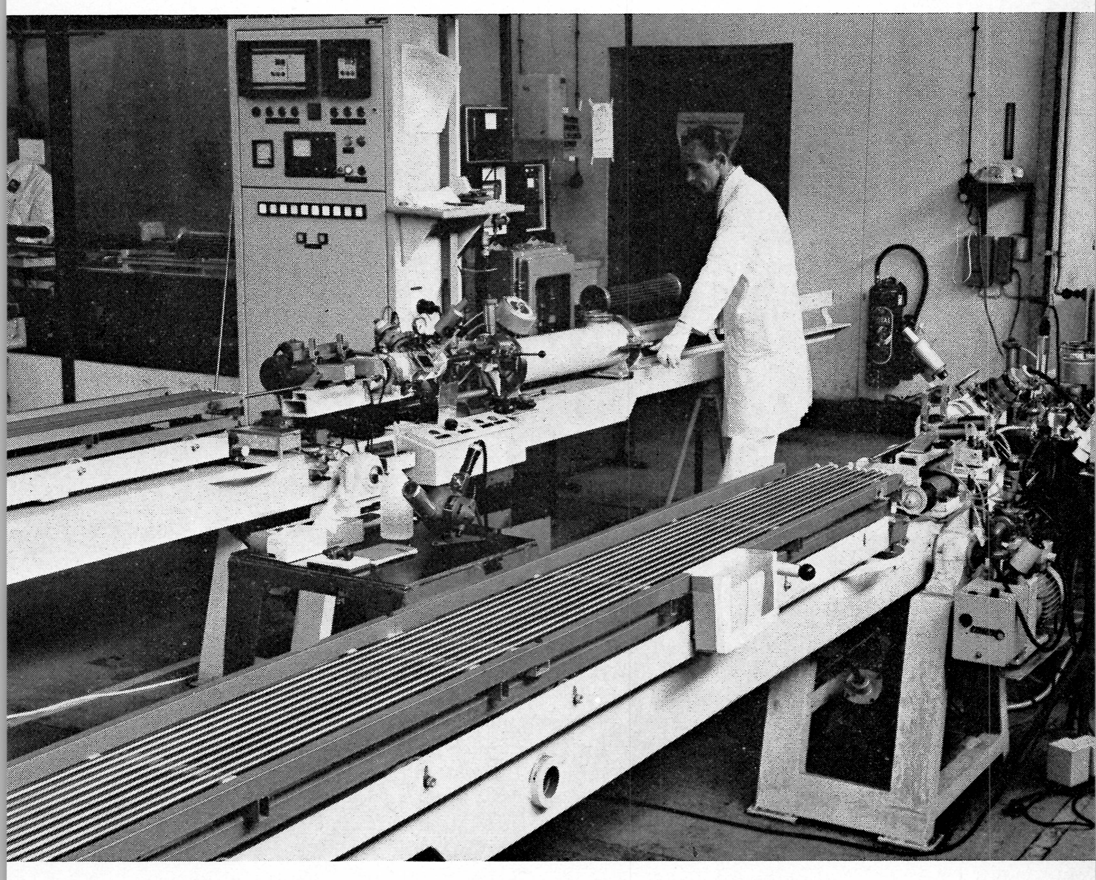


Abb. 29 Einfüllstände für UO_2-Pellets in vorgelegte Zircaloy-Hüllrohre. Man erkennt links die vorgelegten, einseitig verschweißten Hüllrohre. Rechts die komplizierte Anordnung zum Einfüllen, Heliumfluten und Verschweißen mit dem Magazin zur Aufnahme der Pellets (am linken Arm des Mannen).
Foto: RBG

einseitig verschweißte Hüllrohr mit dem offenen Ende in die Verlängerung der Vorlegeschiene an ein Füllstück angeschlossen, über das das Einfüllen erfolgt. Die Tabletten sind in diesem Fall vor der Freigabe zum Laden in einem Trockenofen über mehrere Stunden getrocknet worden.

Im Falle b) wird zunächst jede Brennstoffsäule so aufgeteilt, daß ihre Teilsäulen in Folgepositionen der Magazine liegen, an deren Ende meistens eine Spiralfeder zur Transportsicherung zum Freihalten des Gasplenums angeordnet wird. Nach einer mehrstündigen Zwischenlagerung im Trockenschrank bei 110°C werden die Magazine in Vakuumbehälter der Füllstände einchargiert, in denen das Einfüllen in die einseitig verschlossenen und evakuierten Hüllrohre erfolgt (Abb. 29).

Rohrprüfung

Die Hüllrohre werden 100%ig mittels Ultraschall auf Fehlerfreiheit kontrolliert. Gemessen werden die Wanddicke nach dem Resonanzverfahren, der Außendurchmesser induktiv mit mechanischer Abtastung, der Innendurchmesser pneumatisch. Diese Prüfungen werden kontinuierlich durchgeführt und die Meßwerte auf einen Diagrammstreifen geschrieben. Die Einstellung der Prüfanlage und Fixierung der Fehlergrenzen erfolgt mit Hilfe von Eichstandards. Als Standard für die Fehlerprüfung durch Ultraschall wird ein Rohrstück benutzt, in das Kerben von 5 mm Länge und Tiefe, die im allgemeinen 10% der Wanddicke beträgt, eingearbeitet sind.

Oberflächenbehandlung von Zircaloy-Hüllrohren

Bei der Darstellung der Arbeitsabläufe zur Vorbereitung der Hüllrohre sind drei sich durch die Art der Oberflächenbehandlung unterscheidende Varianten zu betrachten, und zwar:

a) das Hüllrohr wird außen und innen oxidiert für die Brennstabherstellung verwendet;
b) das Hüllrohr wird nur auf der Außenseite oxidiert für die Brennstabherstellung verwendet;
c) das Hüllrohr wird nicht oxidiert, sondern nur geschliffen für die Brennstabherstellung verwendet.

Bei Variante a) ergibt sich folgender Arbeitsablauf:
Die Hüllrohre werden gleichzeitig an beiden Rohrenden zur Schweißnahtvorbereitung auf die erforderliche Länge abgelängt. Daran schließt sich der Reinigungs- und Oxidationsprozeß an. Als Reinigungsschritt wird entweder eine Ultraschall-Reinigung mit anschließender Behandlung in einem NaOH-Bad durchgeführt, oder es wird eine Beizbehandlung vorgenommen (Abb. 30).

Eine für Zircaloy-Rohre geeignete Beizlösung besteht aus 4 Vol.-% HF (40%ig), 34 Vol.-% HNO_3 (60%ig), Rest Wasser. Ein Beizabtrag von 15–20 µ wird je nach Erschöpfungsgrad und Temperatur der Beizlösung innerhalb von 2-4 min. erreicht.

An mitgebeizten Proben wird der genaue Abtrag festgestellt. Nach Ablassen der Beizlösung in einen Vorratsbehälter wird sofort mit vollentsalztem Wasser mehrfach gespült, bis sich ein pH-Wert von 7 ± 1 und ein Widerstand von 0,5 M Ω x cm einstellt.

Die anschließende Oxidation in einem Autoklaven, über 12 bis 24 Stunden bei 300°C in Wasser oder 400°C in Dampf, erzeugt eine gleichmäßige schwarzglänzende schützende Oxidschicht, die 100 %ig visuell überprüft wird. Schon geringfügige Material- oder Oberflächenverunreinigungen werden hierbei durch örtliche Verfärbung der Oxidschicht erkannt. Die Oxidschicht bietet ferner einen guten Schutz bei der sicheren Handhabung der Rohre. Die

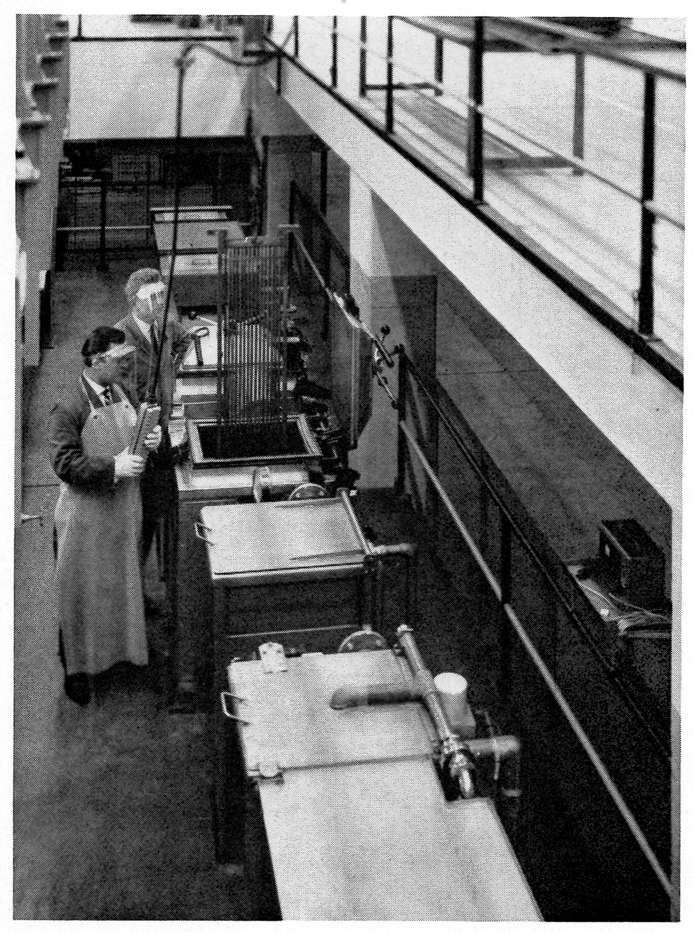


Abb. 30 Oberflächenbehandlung von Zircaloy-Hüllrohren. Als Vorbereitung zur Oxidation im Autoklaven werden die Rohre einer Reinigung und Beizung unterzogen.
Foto: AEG

oxidierten Rohre können dann ohne weitere Behandlung des Rohrendes einseitig mit einem Endstopfen nach dem WIG (Wolfram-Inertgas)-Verfahren verschweißt werden (Abb. 31). Hierbei wird größte Sorgfalt auf die Reinheit des Schutzgases gelegt, da

1. Schweißnaht

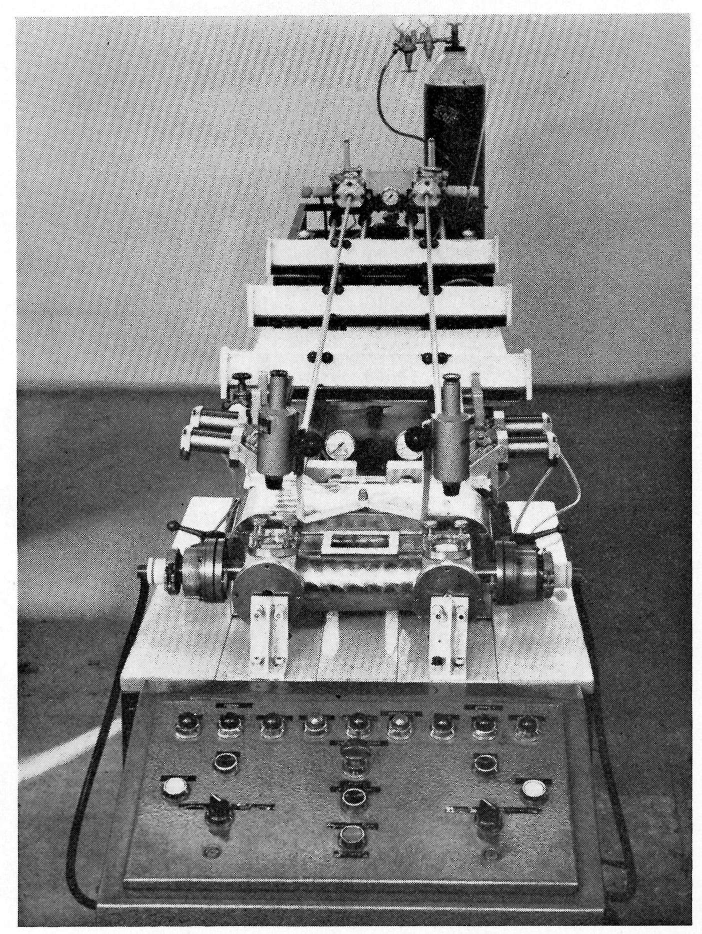


Abb. 31 Schweißmaschine für Hüllrohre. Die dargestellte Maschine wird für die Anfertigung der 1. Schweißnaht eingesetzt. Im Vordergrund hinter dem Bedienungspult zwei Schweißkammern, in die zwei Hüllrohre über eine Vakuumdichtung eingeführt sind. In der Kammer befindet sich hochreines Argon (Flasche im Hintergrund). Durch zwei Fenster läßt sich mit je einem Mikroskop die Einstellung der Elektroden kontrollieren.
Foto: RBG

schon geringe Sauerstoff- und Stickstoffgehalte die Korrosionseigenschaften nachteilig beeinträchtigen. Das verwendete Gas (Argon oder Helium) wird deshalb aus Druckflaschen besonderer Reinheit entnommen. Die aus den Schweißkammern abgeführten Gase können zusätzlich über Analysengeräte geleitet werden, die kontinuierlich den Gehalt an Sauerstoff und Wasser anzeigen.

Nach Ausführung der ersten Schweißnaht erfolgt eine Kontrolle des Schweißnahtdurchmessers mit Lehrring und auf statistischer Grundlage die Röntgenprüfung in zwei um 90° versetzten Positionen am Rohrverschluß. Die mit jeder Charge gleichzeitig aufgenommene Fehlerform enthält kugelförmige Eindrücke, von denen eine Reihe mit etwa 0,35 mm Durchmesser als Kriterium für nicht mehr zulässige Poren in den Schweißnähten dient. Gleichzeitig wird die Schweißnahttiefe überprüft, die größer als die Rohrwanddicke sein muß.

Variante b) erfordert einen anderen Arbeitsablauf. Da nur eine Oxidation der äußeren Hüllrohroberfläche vorgesehen ist, muß das Rohr vor dieser Behandlung beidseitig verschweißt und mit Schutzgas gefüllt sein.

Nach der Oxidation im Autoklaven, wie unter Variante a) angegeben, wird ein Endstopfen abgestochen, wobei die Innenoberfläche auf metallisch blankes Aussehen als Nachweis für die Dichtigkeit bei der Autoklavenbehandlung inspiziert wird. In der gleichen Aufspannung können die Rohre abgelängt, auf etwa 15 mm Länge auf der Oberfläche entoxidiert und zum Schweißen vorbereitet werden.

Variante c) ist ein vereinfachter Verfahrensablauf gegenüber den Varianten a) und b) und bedarf hier keiner eingehenderen Behandlung mehr.

2. Schweißnaht

Nach dem Einfüllen der Brennstabsäule in das einseitig verschweißte Hüllrohr und dem Einfüllen der Stützfeder für den Spaltgasraum ist der Stab zum Verschweißen des zweiten Endstopfens auf der dafür eingerichteten Schweißmaschine bereit. Für diese Schweißung wird vorzugsweise ebenfalls das WIG-Verfahren angewendet. Hierzu wird das offene Ende des Brennstabes in eine kleine Schweißkammer eingeführt. Kammer und Stäbe werden evakuiert und anschließend mit Helium geflutet. Nach dem Aufpressen des zweiten Endstopfens wird dieser mit dem Rohrende verschweißt.

Neuerdings geht die Tendenz dahin, die Brennstoffstäbe vor dem Verschweißen noch einmal bei erhöhter Temperatur unter Vakuum auszuheizen, um jegliche Spur von Feuchtigkeit, gleichgültig ob vom Brennstoff oder von anderen Stabkomponenten herrührend, aus den Brennstoffstäben zu entfernen.

Stabprüfung

Dem Füllprozeß und Verschweißen des zweiten Endstopfens folgt eine Maßkontrolle an der Schweißnaht mit Lehrring und eine Helium-Leckprüfung in einem Vakuumbehälter, der mit einem Massenspektrometer verbunden ist. Die zulässige Leckrate beträgt

10^{-8} Torr x l/sec. Ferner wird die zweite Schweißnaht auf statistischer Grundlage geröntgt und der Film auf Schweißnahtfehler, wie bereits erwähnt, ausgewertet. Hierbei kann auch der einwandfreie Sitz und die Beschaffenheit der Spiralfeder nachgeprüft werden. Abschließend werden die Stäbe einer Maßkontrolle auf Durchmesser, Länge und Geradheit sowie Funktionsprüfungen an Gewindeteilen und einer Oberflächeninspektion unterzogen. Danach können die Stäbe, mit Azeton gereinigt und gegen Verschmutzung geschützt, bis zur weiteren Verarbeitung zu Elementen gelagert werden.

Die Herstellung der Stäbe für den Heißdampfreaktor HDR weicht von der beschriebenen Fertigung von Brennstäben für DWR- und SWR-Reaktoren merklich ab. Sie kann jedoch in diesem Rahmen nicht ausführlich behandelt werden.

3.2.4 Brennelementherstellung

Die Brennstäbe werden meistens in einem gesondert hergestellten Skelett zu Stabbündeln montiert, wobei den Stabhalteplatten und Abstandshaltern die größte Bedeutung zukommt.

Abstandshalter

Die Abstandshalter bestehen meistens aus einem mit Federn versehenen Steggitter, das durch Elektronenstrahlschweißen, WIG-Schweißen oder Vakuumlöten mit Ni-Cr-Si oder Ni-Cr-P-Loten zu-

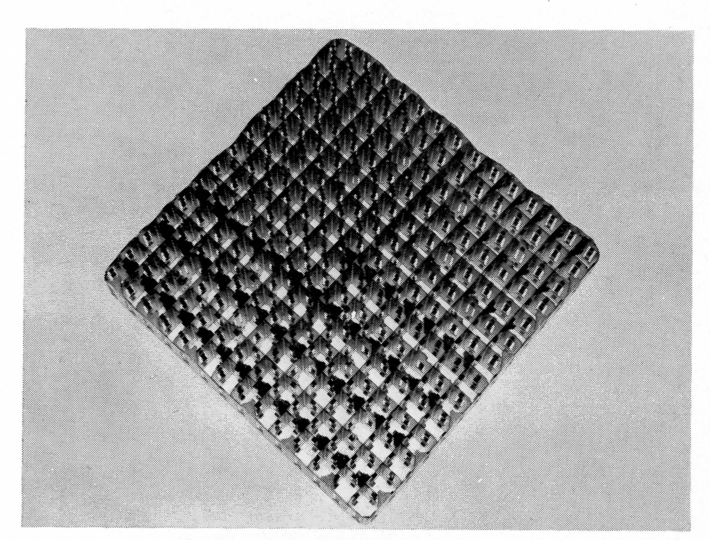


Abb. 32 Abstandshalter für ein Druckwasserelement (KWO, Obrigheim). Man erkennt die Federn zum Andrücken der Stäbe. Material Inconel. Zusammenbau durch Löten.
Foto: RBG

sammengefügt ist. Die Anpreßkräfte der Federn an die Brennstäbe können zwischen 1 und 5 kp betragen. Abb. 32 zeigt einen Abstandshalter für einen DWR, Abb. 33 einen solchen für einen SWR.

Die Blechstreifen für die Abstandshalterstege werden gestanzt und so vorgeformt, daß sie nach dem Entfetten oder Beizen zu einem Gitter zusammengesteckt werden können. Entsprechende Rasterplatten dienen zum Fixieren der Stegposition während des Schweiß- oder Lötvorganges. Sofern, wie bei Abstandshaltern für Schwerwasser- und Siedewasserreaktor-Brennelemente üblich, die WIG-Schweißung eingesetzt wird und die Abstandshalter aus Zircaloy-Teilen bestehen, sind die Montage- und Schweißvorrichtungen so zu konstruieren, daß eine gute Abdeckung durch das Schutzgas für alle Stellen des Abstandshalters erreicht wird und dadurch Anlauffarben weitgehend vermieden werden.

Bestehen die Abstandshalter aus Zircaloy, so müssen sie ebenfalls einer Autoklavenbehandlung in überhitztem Wasserdampf

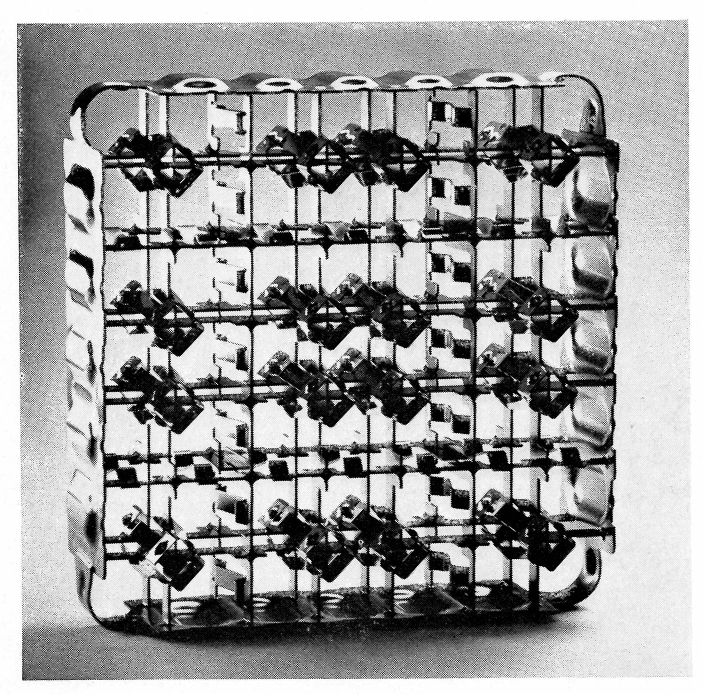


Abb. 33 Abstandshalter für einen Siedewasserreaktor (KWW, Würgassen). Im Prinzip ähnlich wie Abb. 32.
Foto: AEG

unterzogen werden. Bei der sich anschließenden Inspektion der schwarzen Oxidschicht wird insbesondere auf die Schweißzone geachtet.

Stabhalteplatten der Brennelemente werden vorwiegend auf konventionelle Weise durch spanende Bearbeitung entsprechender Schmiede- oder Gußteile hergestellt. Hierbei sind aber auch Feingußverfahren und funkenerosive Herstellmethoden erfolgreich angewendet worden. Sogar Abstandshalter werden neuerdings bei einigen Brennelementkonzeptionen durch Funkenerosion oder chemisches Senken hergestellt (siehe etwa Abb. 11).

Die massiven Kopf- und Fußstücke der Brennelemente (Abb. 34) sowie Drosselkörper und Regelstabkopfstücke werden meistens aus Schmiede- oder Gußteilen vorgefertigt und spanend auf Fertigmaß bearbeitet. Auch hierbei kann das Funkenerosionsverfahren Vorteile gegenüber den üblichen Bearbeitungsmethoden bieten.

Die für Siedewasserreaktoren zur Führung der Steuerstäbe und zur Führung des Kühlmittels verwendeten Brennelement-

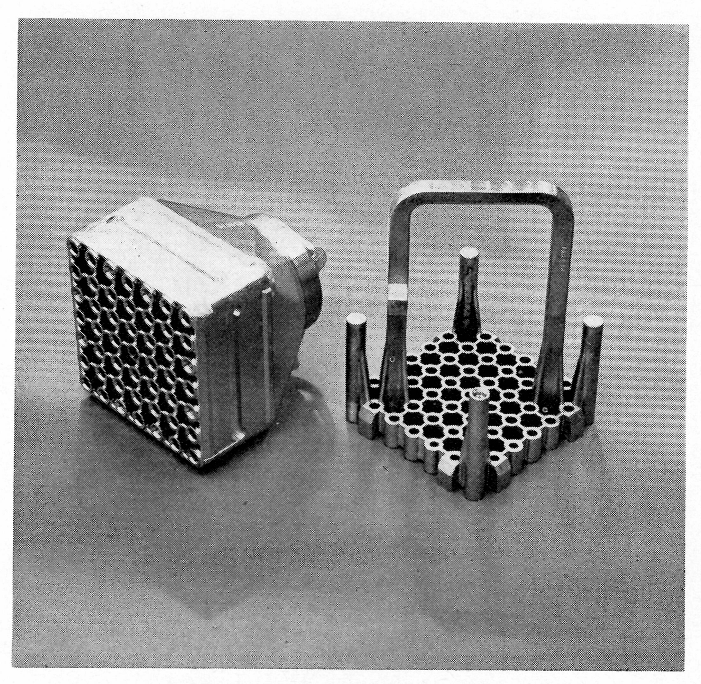


Abb. 34 Fuß- und Kopfstück (rechts) eines Siedewasserreaktors (KWW, Würgassen) aus rostfreiem Stahl. Präzisionsguß bearbeitet.
Foto: AEG

kästen bestehen aus etwa 2 mm dickem Zircaloy-2-Blech. Die Kästen werden üblicherweise aus zwei U-förmig gebogenen Teilen unter Verwendung des WIG-Schweißverfahrens zusammengeschweißt. An die Maßhaltigkeit der ca. 4 m langen Kästen werden hohe Anforderungen gestellt. Auch diese Kästen werden heute meist autoklaviert.

Montage von DWR-Elementen

Zum Zusammenbau von DWR-Elementen wird zunächst eine tragende Konstruktion aus Abstandshaltern und Regelstabführungsrohren als Skelett montiert, bevor man die Brennstäbe einzieht. Als Montagehilfe und zur Vermeidung von Riefen und Kratzern auf den Brennstabhüllen hat sich das vorherige Lackieren der Brennstäbe bewährt. Der Lack kann nach der Fertigmontage des Elements leicht abgelöst werden. Nach Anbringen der Kopf- und Fußstücke und dem Verschrauben bzw. Verschweißen mit den Regelstabführungsrohren schwenkt man das Element in die vertikale Lage, um die Endkontrollen auszuführen. Prüfung der



Abb. 35 Ein Element eines Siedewasserreaktors in der Montage (KWW, Würgassen). Die Abstandshalter sind in einer Vorrichtung zu einem Skelett vereinigt, in das die einzelnen Brennstäbe eingeführt werden. Foto: AEG

Stababstände, der Durchbiegung, der Verdrillung und der äußeren Abmessungen.

Montage von SWR-Elementen

Im Fall von SWR-Elementen werden die untere Gitterplatte und die Abstandshalter auf eine waagerecht stehende, schwenkbare Platte aufgespannt und untereinander ausgerichtet (Abb. 35). Anschließend erfolgt das Einschieben der Stäbe von Hand oder mit Hilfe einer Vorschubeinrichtung. Nachdem die obere Gitterplatte aufgeschraubt ist, wird das Element ebenfalls zur Abmessungskontrolle in die vertikale Position geschwenkt. Die Endkontrolle umfaßt dieselben Prüfungen wie bei Druckwasserelementen. Es empfiehlt sich, als letzte Prüfung nach allen Handhabungen des Elements einen globalen Helium-Lecktest auf Dichtigkeit durchzuführen. Die Brennelementkästen werden üblicherweise erst auf der Baustelle aufgesetzt.

Montage von D_2O-Elementen

Die MZFR-Brennelemente sind beidseitig mit einer kuppelbaren Stabhalteplatte ausgerüstet. Die Brennstäbe werden mit dieser verlötet oder bei neueren Versionen mit dieser verschraubt und verstiftet. Die aus einem Innenring um den zentralen Brennstab, einem Außenring und zwei dazwischenliegenden Wellringen bestehenden 6 Abstandshalter werden durch Reibschluß in ihrer Lage gehalten.

Beim ähnlichen ATUCHA-Brennelement (siehe Abb. 11) werden die 36 Brennstäbe um ein brennstofffreies Tragrohr im äußeren Stabkranz zusammengebaut. 14 Abstandshalter gewährleisten den Stababstand, der größer ist als beim MZFR-Brennelement

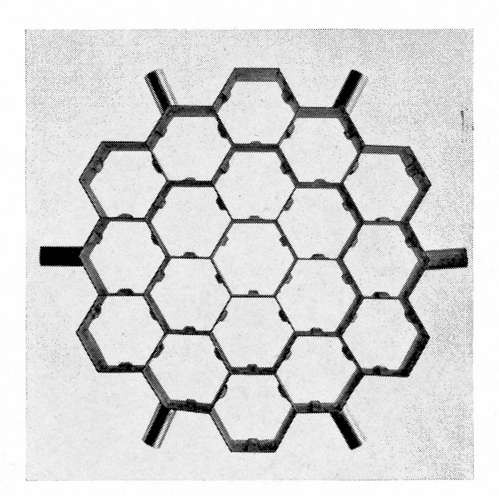


Abb. 36 Abstandhalter des KKN-Reaktors Niederaichbach. Material Stahl. Die 6 Bolzen dienen der Halterung im Graphittragerohr. (Vgl. hierzu Abb. 12)
Foto: Siemens

und nicht mehr durch Wellring-Abstandshalter überbrückt werden kann. Als Abstandshalter dient daher ein starres Zircaloy-Gitter, das durch Funkenerosion hergestellt wird (Abb. 11). Am oberen Ende werden die Brennstäbe durch eine Stabhalteplatte fixiert, an welche sich ähnlich wie beim MZFR ein Tragegestänge anschließt.

Die Brennelemente des CO_2-gekühlten Druckröhrenreaktors KKN sind mit einem dickwandigen, profilierten Graphittragrohr ausgestattet (siehe Abb. 12). Die 19 Brennstäbe in hexagonaler Gitteranordnung werden in einen Stabhalter eingeschweißt, der dem Graphittragrohr aufliegt. Die drei wabenförmigen, funkenerodierten Stahlabstandshalter (Abb. 36) werden durch je 6 Bolzen im Graphittragrohr gehalten.

Die Elemente des Fortgeschrittenen Gasgekühlten Reaktors FGR sind dem des KKN-Reaktors ähnlich. Ihre Herstellung ist nicht prinzipiell von diesen verschieden.

Montage von KNK-Elementen

Auch die Herstellung der Elemente für den KNK-Reaktor geht ähnliche Wege (Abb. 15). Wegen der höheren Betriebstemperatur und dem dabei schädlichen Einfluß auf die stählernen Hüllrohre muß besonderes Augenmerk auf den H-, N- und H_2O-Gehalt im Brennstoff und Füllgas gelegt werden. Kopf- und Fußstücke sind im Feingußverfahren hergestellt. Die Einzelteile der Abstandshalter werden durch Hochtemperaturlöten im Vakuum miteinander verbunden. Verwendet werden hierbei Nickellote. Die Abstandshalter selbst sind in vertikaler Richtung in einem Stützrohr durch Punkten befestigt. Die Elementmontage erfolgt durch Einschieben der Brennstäbe in die bereits auf dem zentralen zylindrischen Moderatorteil befestigten Abstandshalter.

3.3 Herstellung von Magnox-Elementen

T. J. Heal

3.3.1 Herstellung der Uranstangen

Reinigung des Rohstoffs

Der Rohstoff für die Herstellung dieser Natururan-Brennelemente wird als Erzkonzentrat (yellow cake) eingekauft, und die ersten Schritte dienen der Abtrennung und Reinigung des Urans. Das Erzkonzentrat wird in einer dampfgeheizten 4stufigen, kontinuierlich beschickten Löseapparatur in Salpetersäure gelöst. Anschließend werden die unlöslichen Bestandteile, meist Kieselsäure, durch rotierende Filter abgetrennt. Die so erhaltene unreine Uranylnitratlösung wird durch Extraktion gereinigt, wobei bevorzugt Tributylphosphat mit Kerosene verdünnt als Extraktionsmittel benutzt wird. Das Uran wird mit Wasser aus der organischen Lösung zurückgewaschen und so als reine wässerige Lösung von Uranylnitrat erhalten. Dieser Extraktionsprozeß basiert auf den verschiedenen Verteilungskoeffizienten des Urans und der anderen vorhandenen Elemente.

Dieser Prozeß wird im Gegenstrom in Mixer-Settler Apparaturen durchgeführt, wobei mehrstufige Rührer für eine intensive Durchmischung sorgen. Das organische Extraktionsmittel wird nach dem Gebrauch mit Alkali gewaschen, um Hydrolyseprodukte zu entfernen und kann dann wieder benutzt werden.

Umwandlung in Uranmetall

Die Uranylnitratlösung wird anschließend in Verdampfern zum Hexahydrat $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ konzentriert und dann in Urantetrafluorid UF_4 mit Hilfe von drei hintereinander geschalteten Wirbelbetten umgewandelt. Diese werden benutzt, weil sie einen ausgezeichneten Kontakt zwischen dem Produkt und dem reagierenden Gas vermitteln, die Temperatur sehr gleichmäßig verteilt ist und leicht kontrolliert werden kann und weil schließlich die Förderung der festen Produkte sehr leicht erfolgt. Im ersten dieser Wirbelbetten findet eine Denitrierung statt. Hierbei wird die konzentrierte Uranylnitratlösung in ein Wirbelbett injiziert, in welchem UO_3-Körner bei 300°C in vorgeheizter Luft aufgewirbelt sind. Hierbei zersetzt sich das Nitrat zu UO_3, das kontinuierlich abgezogen und pneumatisch dem zweiten Wirbelbett zugeleitet wird.

$$UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O \longrightarrow 6H_2O + UO_3 + NO_3 \cdot NO_2$$

Hier wird es in einer Atmosphäre von Wasserstoff als Wirbelgas zu UO_2 reduziert.

$$UO_3 + H_2 \longrightarrow UO_2 + H_2O$$

Dieser Prozeß wird diskontinuierlich betrieben und erfordert für den Start zunächst eine Wärmezufuhr, um die Reaktion einzuleiten. Ist sie in Gang, so muß gekühlt werden, damit die Temperatur nicht zu hoch steigt.

Der letzte der drei Schritte, nämlich die Umsetzung von UO_2 in UF_4 ist ebenfalls ein diskontinuierlicher Prozeß und wird in einem dritten Wirbelbett ausgeführt, wobei Fluorwasser HF als Wirbelgas dient.

$$UO_2 + 4HF \longrightarrow UF_4 + 2H_2O$$

Überschüssige Flußsäure und das bei der Reaktion entstandene Wasser werden kondensiert. Die Säure wird durch Destillation konzentriert und kann wieder benutzt werden.

Das so gewonnene Urantetrafluorid UF_4 ist hochrein und wird durch eine exotherme Reaktion mit Magnesiummetall zu Uranmetall reduziert:

$$UF_4 + 2Mg \longrightarrow U + 2MgF_2$$

Obwohl die Reaktion unter Wärmeentwicklung verläuft, reicht die entstehende Wärme nicht aus, um die beiden Reaktionsprodukte Uranmetall und MgF_2 zu schmelzen und zu trennen. Deshalb muß das Reaktionsgefäß zusätzlich geheizt werden. Zur Durchführung dieser Reaktion werden UF_4-Pulver und Magnesiumspäne gemischt, die Mischung in die Form großer Tabletten gepreßt und diese Tabletten in einen Graphitbehälter übereinandergeschichtet, der seinerseits in einen verschließbaren Behälter aus Edelstahl eingebracht wird. Dieser Behälter kommt

dann in einen vorgeheizten Ofen, die Luft wird evakuiert und ein Teildruck an Argon hergestellt. Wenn die Mischung aus UF_4 und Mg die Zündtemperatur erreicht, läuft die Reaktion sehr rasch ab und ist innerhalb von Sekunden vollendet. Hierbei heizt sich die Mischung stark auf, so daß das geschmolzene Metall und die ebenfalls geschmolzene Schlacke (MgF_2) gut getrennt werden. Das Metall fließt in einen Sammelbehälter am Fuß des Reaktionsgefäßes. Während des Abkühlens wird der innere Behälter aus dem äußeren entfernt, der Graphit abgeschlagen und der Uranbarren mit den Schlackenresten aus der Kokille entnommen. Die Schlacke wird zunächst mechanisch entfernt, die letzten Spuren anschließend durch Beizen und Waschen.

Herstellung der Uranstangen

Das Uranmetall wird meist in Form langer Stäbe oder Rohre eingesetzt. Diese werden durch Gießen hergestellt. Das gegossene Teil wird dann einer Wärmebehandlung unterzogen, um das Korn zu verfeinern und schließlich zu den endgültigen Dimensionen spanend bearbeitet. Weil geschmolzenes Uranmetall lebhaft mit den meisten Metallen und Gasen reagiert, findet das Schmelzen in einem Vakuum-Induktionsofen in einem Graphit-Tiegel statt. Die Schmelzcharge besteht aus reinem neuen Metall und festem Metallabfall und Spänen, die von der anschließenden mechanischen Bearbeitung stammen. Legierungszusätze, wie Eisen und Aluminium, werden als Vorlegierung ebenfalls dieser Schmelzcharge zugesetzt. Die Charge wird dann zu Stäben in eine Kokille vergossen. Jeder Guß wird geprüft, um sicher zu gehen, daß die Zusammensetzung den Spezifikationen entspricht und daß die Legierungszusätze gleichmäßig verteilt sind.

Tiegel, Gießvorrichtung und Kokillen sind in einer wassergekühlten Glocke angeordnet, die evakuiert wird. Wenn die Charge aufgeschmolzen ist, hält man sie eine kleine Weile auf der Gießtemperatur, um der restlichen Schlacke Gelegenheit zum Aufschwimmen zu geben. Dann hebt man einen Verschlußbolzen am Fuß des Tiegels, und das flüssige Metall fließt in eine Graphitverteilerplatte und von hier über eine Anzahl kleiner Düsen in die Kokillen. Der Gießvorgang kann durch ein Schauglas im äußeren Gehäuse beobachtet werden. Die Kokillen bestehen aus Gußeisen, die in einem mechanischen Gerüst gehalten sind. Sie sind durch einen Überzug aus eingeschlemmtem Aluminiumoxid an der inneren Oberfläche gegen einen Angriff des flüssigen Metalls geschützt. Nach dem Abkühlen wird das Kokillenbündel von der Ofenglocke entfernt und die Stäbe vom Gußkopf getrennt, der in der Verteilerplatte verbleibt. Die Uranstäbe kommen dann zur weiteren Reinigung, Inspektion usw. Dieser Prozeß der Entfernung der Stäbe aus den Kokillen erfolgt in ventilierten Behältern, um eine Kontamination der Umgebung auf ein Minimum zu halten. Der Tiegel wird gereinigt und zum weiteren Gebrauch vorbereitet, indem die anhaftenden Metallpartikel entfernt werden. Schließlich wird er ausgeheizt, um die restlichen Rückstände

zu oxidieren. Auch diese Arbeiten werden zur Vermeidung von Kontamination unter Abschluß durchgeführt. Im Gußzustand hat Uranmetall, wie jedes andere Metall auch, eine grobe Kornstruktur und alle Stäbe, die für den Einsatz im Reaktor bestimmt sind, müssen einer Wärmebehandlung unterworfen werden. Diese Wärmebehandlung soll, wie in Kap. 3.1.2. beschrieben, ein texturfreies, feines Korn bewirken, wodurch verhindert wird, daß die Stäbe sich unter Bestrahlung verlängern oder daß sich die Oberfläche aufrauht. Die Wärmebehandlung besteht in einem Aufheizen in die β-Phase und einem Abschrecken auf Zimmertemperatur. Zu diesem Zweck werden die Stäbe zum Aufheizen durch eine Induktionsspule gezogen und anschließend sofort durch Ansprühen mit Wasser abgeschreckt. Mit Hilfe einer metallographischen Untersuchung wird sichergestellt, daß die erforderliche Kornstruktur eingestellt ist.

Nach der Wärmebehandlung werden die Stäbe auf die endgültigen Abmessungen bearbeitet, wobei spitzenlos arbeitende Maschinen benutzt werden, um den äußeren Durchmesser einzustellen. Danach werden in bestimmten Abständen Rillen in den Umfang eingefräst, die sogenannten „Anti-Ratcheting-Rillen". Mit „Ratcheting" wird ein Schaden bezeichnet, der bei den ersten Magnox-Reaktoren auftrat und der mit der stark unterschiedlichen Wärmedehnung von Magnox-Hülle und Uranstab zusammenhängt (Magnox dehnt sich beim Erwärmen viel stärker aus als Uran). in die Rillen wird die Magnoxhülle durch eine Autoklavbehandlung eingedrückt, so daß Stab und Hülle fest miteinander verzahnt werden. Nach der Bearbeitung werden die Stäbe auf Länge geschnitten und entgratet. Bei allen diesen Verfahrensschritten wird eine automatische Handhabung und Zuführung angewendet.

3.3.2 Montage des Brennelementes

Vorbereitung der Magnox-Hüllen

Die Uranstäbe werden in siedendem Trichloräthylen und anschließend in Trichloräthylendampf entfettet. Die fertigen Magnoxhüllen und Endkappen sind beim Bezug bereits relativ sauber; sie werden nur in Trichloräthylendampf entfettet. Die Enden der Hüllen und der Endkappen, wo die Schweißnähte gelegt werden, werden zusätzlich durch Bürsten gereinigt. Der Stab wird in die Hülle eingesetzt, wobei genau wie bei den folgenden Arbeitsschritten sorgfältig darauf geachtet wird, daß die Kontamination der äußeren Oberfläche mit Uran möglichst klein bleibt.

Zunächst wird eine Scheibe aus Aluminium-Oxid in das eine Ende der Hülle eingeschoben, bis sie an den Uranstab anschließt. Dann wird die Endkappe in dieses Ende eingeschraubt, bis die Enden von Endkappe und Hülle zusammenfallen. Das zweite Ende der Hülle wird abgedreht bis zu einem bestimmten Abstand vom Uranstabende, der gerade lang genug ist, daß kein freier Raum bleibt, wenn die zweite Aluminiumoxidscheibe und zweite Endkappe eingelegt bzw. eingeschraubt sind.

Die Hülle wird dann mit einer Mischung aus Helium und Luft gefüllt, indem diese Mischung durch die Hülle geblasen wird. Um den Durchtritt des Gases durch die Endkappen zu erleichtern, sind die Gewinde mit longitudinalen Nuten versehen.

Schweißen

Die Schweißnähte werden nach dem WIG-Verfahren (Wolfram-Inertgas) angefertigt (Abb. 37). Die Nähte werden visuell und röntgenographisch geprüft. Durch einen Helium-Lecktest mit einem Massenspektrometer wird zusätzlich die Dichtigkeit der Schweißnähte kontrolliert. Für die Schweißung wird ein Wechselstromgenerator benutzt. Der Bogen wird durch eine überlagerte Hochfrequenz stabilisiert und durch Hochspannung gezündet. Die Elektrode besteht aus thoriertem Wolfram mit Gasschutz. Der Schweißvorgang selbst ist so programmiert, daß optimale Wärme-



Abb. 37 Blick in eine Anlage zur Herstellung von Magnox-Brennelementen in Springfields (England). Im Mittelpunkt eine Schweißvorrichtung (rechter Mann).
Foto: UKAEA

bedingungen eingehalten und damit gute Schweißnähte erzielt werden.

Nachdem der Stab an beiden Enden verschweißt ist, wird die Hülle in die „Anti-Ratcheting-Rillen" an den Uranstab angedrückt. Dies kann durch Gasdruck oder aber hydraulisch erfolgen. Ob man den einen oder anderen Prozeß wählt, hängt davon ab, in welcher Temperaturzone des Reaktors das betreffende Element eingesetzt wird.

Für die Positionen bei höheren Temperaturen werden die Hüllen durch Gasdruck bei etwa 500°C angepreßt. Dies führt zu großen und beständigen Körnern in der Hüllenwand. Für Positionen bei niedriger Temperatur im Reaktor wird ein hydraulisches Anpressen angewendet. Die Temperatur beträgt dabei 250°C, der Druck ist höher als beim Gasandruckverfahren. Dies führt zu einer feineren Kornstruktur in der Hüllenwand, die für die niedere Temperatur stabil ist. Um eine schädliche Verformung an den Schweißnähten zu vermeiden, die durch Hohlräume entstehen kann, die durch die unterschiedliche Wärmedehnung von Uranstab und der Magnesiumlegierung der Hülle herrühren kann, wird das beidseitig verschlossene Brennelement während des Andruckvorganges in einen Stahlrahmen eingespannt, so daß die Längenänderung der Hülle nicht größer ist als die des Uranstabes. Nach dem Andrücken wird das Element geröntgt, um zu prüfen, ob die Hülle in die Rillen im spezifizierten Maße eingedrückt wurde.

Elementprüfung

Um eine Urankontamination von der Oberfläche des umhüllten Elementes zu beseitigen, wird dies mit verdünnter Zitronensäure abgesprüht, mit Wasser gewaschen und mit heißer Luft getrocknet. Ein gewisser Anteil der Brennelemente wird in einem α-Proportionalzähler geprüft, um sicherzustellen, daß die geforderte Freiheit von Uranspuren an der Oberfläche auch wirklich erreicht ist.

Im Anschluß daran wird ein zweiter Helium-Lecktest auf Dichtheit durchgeführt; schließlich wird das Element visuell und auf die Dimensionen überprüft.

Bei einigen Brennelementtypen werden radiale Verstärkungsbleche aus Magnesium-Legierung in Nuten angebracht, die parallel zur Stabachse in das Rippenprofil eingearbeitet sind. Sie werden durch Klammern gehalten, die das Brennelement umfassen (siehe hierzu Abb. 6). Die Klammern werden durch Widerstandspunktschweißung mit den Blechen verbunden; diese werden vorher durch Beizen und Bürsten gereinigt. Bei anderen Brennelementtypen sind die Verstärkungsbleche ein integraler Bestandteil der Hülle (siehe z. B. Abb. 37).

Bei Brennelementen, die übereinander im Reaktor angeordnet werden, wird das Element noch durch konische Endstücke vervollständigt, von denen das eine napfförmige am oberen Ende und das andere dornförmige am unteren Ende angebracht werden. Diese Teile werden aufgeschraubt und durch Verstiften befestigt. Diese Endstücke enthalten eine Edelstahlhülse und eine

Graphit-Zwischenschicht, um zu verhindern, daß zwei Elemente zusammenkleben. Einige Brennelementtypen sind unabhängig voneinander in Graphitrohren oder -streben aufgehängt. In diesem Fall wird das Brennelement durch Zirkon- oder Stahlbrücken mit dem Graphitrohr verbunden.

Die fertiggestellten Brennelemente werden in Polyäthylenhüllen eingeschweißt und in Kisten verpackt für den Transport zum Reaktor.

3.4 Herstellung von Hochtemperaturelementen

F. Herrmann, H. Huschka

3.4.1 Herstellung der beschichteten Brennstoffpartikeln

Brennstoffkerne

Der Durchmesser der Brennstoffkerne liegt gewöhnlich zwischen 200 und 800 μ, die Dichte beträgt im allgemeinen 80 bis annähernd 100 % der Theorie. Zur Herstellung solcher Kerne haben sich mehrere Verfahren durchgesetzt, die im folgenden jedoch nicht alle beschrieben werden können.

Trockenes Verfahren

Als Beispiel für ein „trockenes"-Verfahren soll hier ein Granulationsverfahren zur Herstellung von Karbidteilchen beschrieben werden. Uranoxidpulver allein oder Uranoxid- und Thoriumoxidpulver werden gemeinsam mit so viel Ruß vermischt, wie für den Umsatz der Oxide zu Karbiden notwendig ist. Außerdem wird etwas Wasser und Bindemittel (z. B. Aluminiumstearat) zugegeben. Nach intensiver Mischung der Komponenten wird aus diesem Pulver nach üblichen Granulierverfahren ein Primärgranulat gebildet. Durch weiteres Zuführen von Pulver während des Granulierens wird dieses Primärgranulat bis zur gewünschten Größe aufgebaut. Diese sogenannten „Grünlingskerne" werden anschließend zu Karbid umgesetzt und geschmolzen. Dazu werden sie, um ein Zusammenbacken der Teilchen während der Temperaturbehandlung zu verhindern, entweder mit Graphitpulver vermischt oder mit Ruß umhüllt. Bei etwa 1800°C tritt die Reaktion zum Karbid ein, bei ca. 2200°C können die Teilchen gesintert, bei ca. 2550°C geschmolzen werden.

Nach diesem Verfahren hergestellte Brennstoffkerne sind z. B. im AVR-Reaktor eingesetzt.

Nasses Verfahren

Die zur Herstellung von Brennstoffkernen erarbeiteten nassen Verfahren lassen sich in zwei große Gruppen unterteilen:
Solche, die die Teilchenbildung aus einem Uran- bzw. einem Uran/Thoriumsol vornehmen und solche, die von wässrigen Nitratlösungen ausgehen. Ein Sol ist eine klare Lösung, bei der die gelösten Komponenten als Moleküle und nicht dissoziiert als Ionen vorliegen.

Der erste Schritt des sogenannten Sol-Gel-Verfahrens besteht in der Herstellung eines Uran- oder Uran/Thoriumsols. Dies er-

folgt meist durch Fällung und Peptisation. Will man reines Uransol herstellen, ist allerdings vorher eine Reduzierung von 6-wertigem zu 4-wertigem Uran notwendig. Der Sol-Strahl wird dann aus einer Düse in eine flüssige Phase gegeben, mit der er nicht mischbar ist und dabei in kugelförmige Tropfen aufreißt. Es haben sich zwei Wege als gangbar erwiesen: Die Soltropfen werden in 2-Äthyl-1-Hexanol gebildet. Diese Flüssigkeit entzieht dem Soltröpfchen Wasser und es tritt Gelierung ein. Nach einem anderen Verfahren wird dem Sol Hexamethylentetramin zugesetzt und der Sol-Strahl wird in heißes Öl eingespeist. Dabei spaltet das Hexamethylentetramin Ammoniak ab, das zu einer inneren Gelierung und Verfestigung der Tröpfchen führt. Die auf beiden Wegen gewonnenen Grünlingskerne werden gewaschen, getrocknet und bei etwa 1200°C gesintert. Man erreicht bei diesem Verfahren hochdichte und sehr runde Oxidkerne. Durch Zumischen von Ruß zu den Solen und entsprechender Ofenbehandlung dieser C-haltigen Grünlingskerne kann man auch Karbidteilchen erhalten.

Bei den Verfahren, die von Nitrat-Lösungen ausgehen, ist es möglich, wäßrige Uranyl- oder Uranyl/Thoriumnitratlösungen direkt zur Teilchenbildung einzusetzen. Diese Lösungen, die meist mit organischen Komponenten versetzt sind, werden durch Düsen geeigneten Durchmessers in eine Ammoniakgasatmosphäre gepreßt, wo der Strahl zu kugelförmigen Tröpfchen aufreißt, die sogleich durch Ammoniak verfestigt werden.

Diese Teilchen fallen dann in wäßriges Ammoniak: Sie werden anschließend gewaschen, getrocknet, kalziniert und gesintert. Die Sintertemperaturen liegen bei etwa 1700°C.

Schließt man die Düsen an einen Vibrator an, so wird das Aufreißen des Strahles zu Tröpfchen erleichtert und man erhält ein sehr enges Durchmesserspektrum.

Durch Änderungen der organischen Komponenten ist es bei diesem Verfahren im Gegensatz zum Sol-Gel-Verfahren möglich, auch Kerne mit einer bestimmten Porosität, ca. 2-20 %, herzustellen.

Beschichtung

Die Beschichtung mit pyrolytischem Kohlenstoff wird üblicherweise in einem Wirbelbett durchgeführt, welches nach unten konisch zuläuft und durch eine Düse angeströmt wird. Zur Abscheidung von Schichten aus pyrolytischem Kohlenstoff wird bei hohen Temperaturen Kohlenwasserstoff als Beschichtungsgas und Argon oder Helium als Trägergas in das Wirbelbett eingeblasen. Je nach den gewünschten Schichteigenschaften werden die Pyrolysebedingungen variiert. Durch Änderung der Beschichtungstemperaturen und der Aufwachsgeschwindigkeit kann man die Dichte, die Anisotropie und die Kristallitgröße der Schichten stark beeinflussen. Die verschiedenen Arten von Schichten sind im Kapitel 3.1.2 bereits ausführlich geschildert worden.

Die für bestimmte Reaktorbedingungen erforderlichen Schichteigenschaften und Schichtdicken werden aus Modellrechnungen

abgeschätzt und in Reaktortesten überprüft. Die Chargengröße beträgt heute einige Kilogramm.

3.4.2 Brennelementherstellung

Kugelförmige Elemente

Brennelemente für Hochtemperaturreaktoren vom Kugelhaufentyp sind Kugeln, die aus einem brennstoffhaltigen Graphitkern und einer brennstofffreien Zone aus Graphit bestehen (siehe Abb. 20). Der Graphit ist zugleich Strukturmaterial, Moderator und Wärmeleiter. Brennelemente dieser Art mit einem Durchmesser von 60 mm werden seit einiger Zeit erfolgreich im AVR-Reaktor in Jülich eingesetzt und werden für den 300 MW THTR ab 1972 produziert werden.

Aufgrund der Konstruktionsmerkmale des Kugelhaufenreaktors werden vom Brennelement nicht nur gutes Abbrandverhalten, sondern auch besonders hohe mechanische Festigkeiten während der gesamten Verweilzeit von etwa vier Jahren im Reaktor gefordert. Beim Beladen des Reaktors, beim Umwälzen des Brennelementcores und beim Einfahren der Abschaltstäbe in das Kugelbett werden die Elemente einer hohen mechanischen Belastung ausgesetzt. Dabei dürfen weder im Innern des Elementes noch an seiner Oberfläche Schäden auftreten.

Der Herstellungsprozeß für das Brennelement ist in Abb. 38 in Form eines Fließschemas dargestellt.

Aus Naturgraphit- und Elektrographitpulver wird eine homogene Mischung hergestellt, die zusammen mit dem gelösten Bindemittel verknetet wird. Die Knetmasse wird zur Entfernung des Lösungsmittels getrocknet und dann auf eine genau definierte Körnung gemahlen. Die Optimalisierung der Gemischzusammensetzung ist in jahrelanger Entwicklungsarbeit im Zusammenspiel mit Bestrahlungsversuchen erarbeitet worden.

Als Ausgangsstoff muß ein gut graphitiertes Material eingesetzt werden, da eine Wärmebehandlung des fertigen Elementes bei Graphitierungstemperatur nicht möglich ist, denn bei diesen hohen Temperaturen würden die beschichteten Brennstoffpartikeln zerstört werden. Ein solches gut graphitiertes Material ist der Naturgraphit. Versuche mit Naturgraphit haben jedoch gezeigt, das mit diesem allein infolge seiner Kornstruktur keine ausreichenden Festigkeiten erreicht werden. Deshalb wird ein bestimmter Anteil graphitierten Petrolkokses zugegeben, was aufgrund der nadeligen Struktur dieses Materials zu einer guten Verzahnung und damit guten Festigkeit führt.

Mit dem so hergestellten Graphitpreßpulver werden zunächst die Brennstoffpartikeln nach einem Dragierverfahren mit einer dünnen Graphitschicht umhüllt, um zu verhindern, daß sie beim anschließenden Pressen beschädigt werden (sogen. „overcoating"). Die umhüllten beschichteten Brennstoffpartikeln werden mit Graphitpreßpulver homogen gemischt und in einer Gummimatrize quasi isostatisch zum Brennstoffkern vorgepreßt.

1. Preßschritt

Die gleichmäßige Partikelverteilung ist bei der Brennelementherstellung ein ganz wesentlicher Punkt, da nur eine homogene Brennstoffverteilung garantiert, daß im Reaktorbetrieb keine unzulässig hohen Temperaturen im Element auftreten. Um eine homogene Verteilung des Brennstoffes im Inneren des Kernes zu gewährleisten, bedarf es ganz spezieller Misch- und Rührverfahren vor und nach dem Einfüllen der Partikeln und der granulierten

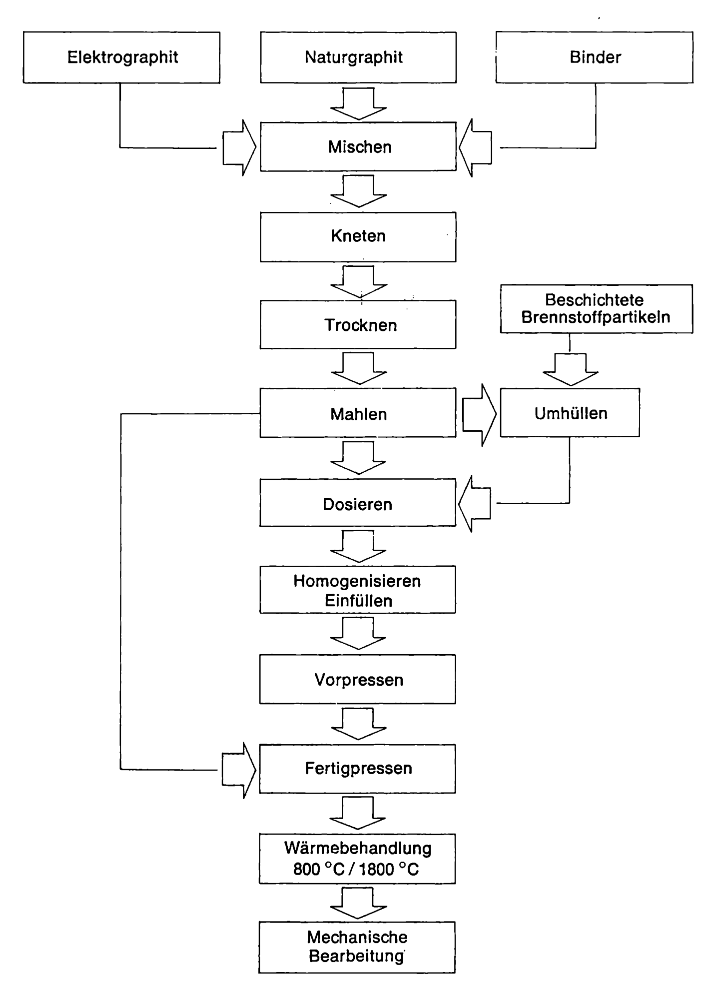


Abb. 38 Fließschema der Herstellung von kugelförmigen Brennelementen für den THTR-Reaktor.

Knetmasse in die Matrize. Die Bedingungen beim Mischen und Einfüllen müssen andererseits so gewählt werden, daß bei der Herstellung eine möglichst hohe Isotropie der Matrix erreicht wird.

2. Preßschritt

In einem weiteren Preßschritt wird auf den Kugelkern eine brennstofffreie Schale aus dem gleichen Graphitpreßpulver aufgepreßt (siehe Abb. 20). Der Preßling wird dann zur Verkokung des organischen Binders in einer Inertgasatmosphäre langsam auf 800°C erhitzt. Hierbei erhält der Graphit schon im wesentlichen seine endgültigen Eigenschaften, wie Dichte, Porosität usw. Eine weitere Temperaturbehandlung bis 1800°C bringt noch eine Verbesserung der Festigkeits- und Leitfähigkeitseigenschaften und eine Strukturverbesserung des Binderkokses.

Eine Übersicht über die Eigenschaften des Brennelementes und der Matrix zeigt die Tabelle 8.

Tab. 8: Eigenschaften des kugelförmigen Brennelementes

Eigenschaft	Einheit	Wert
Graphitdichte (g/cm³)		1,72
offene Porosität (%)		20
spez. elektr. Widerstand (μ Ohm · cm)		1500
Korrosionsgeschwindigkeit (1000°C, 1 Vol.% H_2O in Ar)	mg/h · cm²	0,8
Wärmeleitfähigkeit (cal/cm · °C · sec)		0,08
mittlere Bruchlast (kp)		2300
mittlere Fallfestigkeit *)		600

*) Anzahl der Fälle aus 4 m Höhe auf ein dichtgepacktes Kugelbett bis zur Beschädigung

Andere Elementformen

Neben den kugelförmigen Elementen sind noch stab- und bündelförmige Elemente, ganz besonders aber Blockelemente, von Interesse für Hochtemperaturreaktoren. Als Beispiel für ein Stabelement sei im folgenden kurz das Element des amerikanischen Peach Bottom Reaktors beschrieben. Das Brennelement enthält zwischen einer äußeren Graphithülse und einem inneren Graphitdorn brennstoffhaltige ringförmige Einsätze (sogenannte „Compacts"), Graphitkörper, in denen die beschichteten Brennstoffpartikeln homogen verteilt vorliegen. Die Graphitrohre sind mit zwei axialen Reflektoren verschraubt. Das Element besitzt einen Greifkopf am oberen und einen Konus für den Einsatz in die Bodenplatte am unteren Ende.

Auf dem Gebiet der Blockelemente werden gegenwärtig im wesentlichen zwei Richtungen verfolgt. In beiden Fällen handelt es

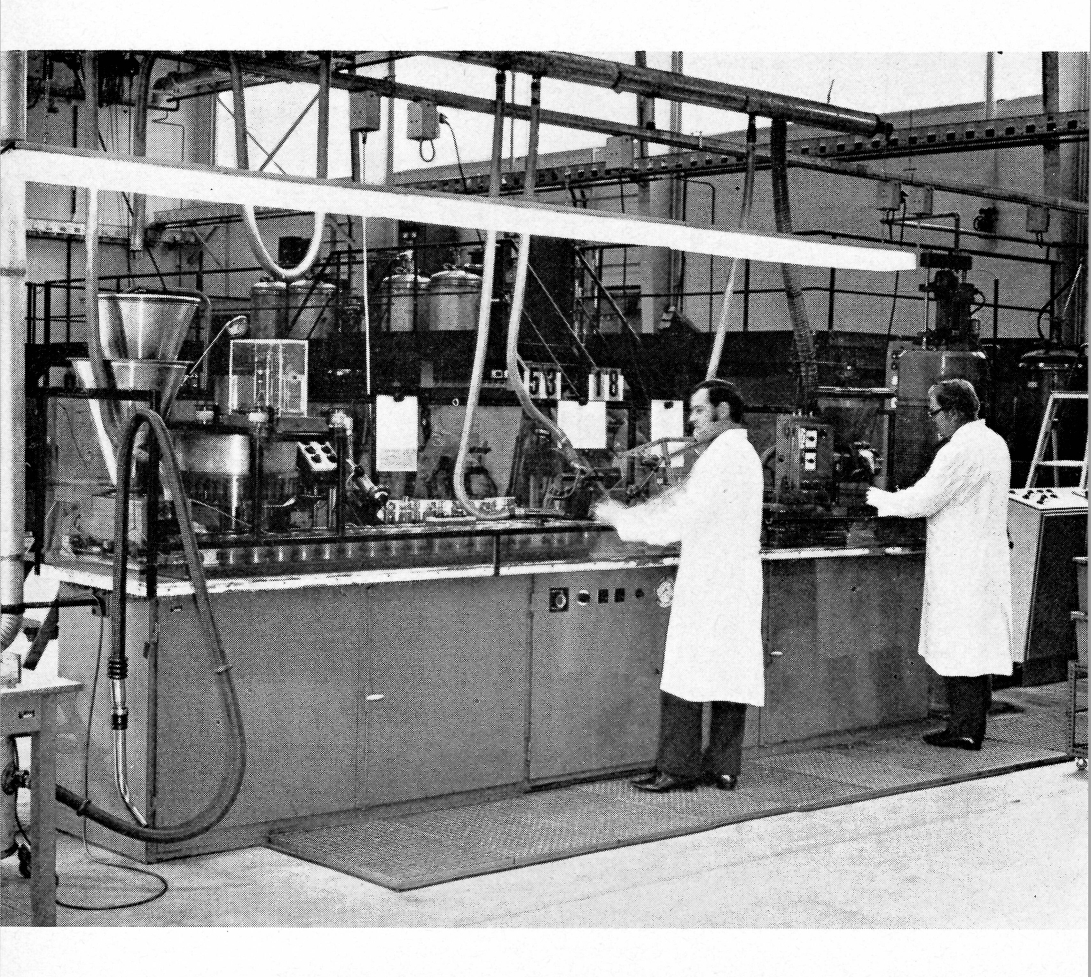


Abb. 39 Herstellungslinie für Elemente des AVR-Kugelhaufenreaktors in Jülich. Man erkennt links den trichterförmigen Behälter zum Einwägen des Graphitpreßpulvers für die Matrix, rechts daneben die Waage, mit der die Partikeln automatisch zudosiert werden. Der linke Mann hat die Aufgabe, die Mischung in eine Preßform zu füllen und mit einer (im Bild durch den Mann verdeckten) Presse den brennstoffhaltigen Kern zu pressen. Der zweite Mann hält die Preßform, in der die brennstofffreie Schale aufgepreßt wird. (Presse unmittelbar hinter dem Mann. Vgl. hierzu Abb. 20).
Foto: NUKEM

sich um hexagonale Graphitblöcke (Schlüsselweite 40–60 cm, Höhe 80-100 cm) mit axialen Bohrungen zur Aufnahme des Brennstoffes und für die Kühlkanäle. Beim ersten Konzept dient ein Teil der Bohrungen im Graphitblock nur zur Aufnahme des Brennstoffes, ein anderer Teil zur Kühlung (Gulf General Atomic in den USA, Abb. 8). Die Brennstoffkörper sind in diesem Fall indirekt gekühlt, d. h. über den Graphit des Blockes. Das zweite Konzept sieht vor, daß die Bohrungen zur Aufnahme des Brennstoffes gleichzeitig Kühlkanäle sind (englischer Entwurf). Das Kühlgas strömt unmittelbar an den brennstoffhaltigen Einsätzen vorbei. In diesem Fall kann entweder nur Außenkühlung oder aber auch Außenkühlung mit zusätzlicher Innenkühlung angewandt werden. Da die Einsätze direkt gekühlt sind, müssen sie an den Kühlflächen wie das Kugelelement eine brennstofffreie Graphitzone besitzen, um die beschichteten Brennstoffpartikeln vor Beschädigung zu schützen.

Die bei der Brennelementherstellung zur Verwendung kommenden Stäbe und Blöcke bestehen aus speziell für diesen Zweck entwickelten, unter Bestrahlung getesteten Graphitsorten.

„Compacts“

Die Herstellung des Brennelement-Einsatzes (compact) ist in vielen Schritten der Herstellung des kugelförmigen Brennelementes ähnlich. Zunächst wird, wie weiter oben beschrieben, aus Graphitpulver und Binder durch Mischen, Kneten und Mahlen ein verpreßbares, rieselfähiges Pulver definierter Körnung hergestellt. Die Art der verwendeten Rohstoffe und die Rohstoffzusammensetzung richten sich nach dem Preßverfahren und der Dimension der herzustellenden Preßkörper. Das Preßpulver wird in einer Dragiertrommel auf die Brennstoffpartikeln aufgranuliert („overcoating“). Im Falle eines indirekt gekühlten compacts werden die umhüllten Partikel in einem Schritt zum Brennelementkörper verpreßt. Im Falle eines direkt gekühlten compacts folgt auf das Verpressen des partikelhaltigen Körpers in einem zweiten Schritt das Aufpressen der brennstofffreien Zone. Die Temperaturbehandlung erfolgt auf ähnliche Weise wie bei den kugelförmigen Brennelementen.

3.5 Herstellung von MTR-Elementen

A. Wolf

Wie schon in 3.1 erwähnt, verwendet man für wassergekühlte Materialprüf- und Forschungsreaktoren rechteckige oder rohrförmige Brennelemente mit geraden oder gebogenen Platten (siehe Abb. 9 und 17). Diese Brennstoffplatten, die den Brennstoff als Uran-Aluminium-Legierung oder als UAl_3/Al-Cermet (Cermet = Verbundkörper aus einem **ker**amischen, in diesem Fall UAl_3 und einem **met**allischen Anteil, in diesem Fall Aluminium) in einer stoffschlüssigen Aluminiumhülle tragen, sind parallel, mit gleich

großen Abständen zueinander angeordnet, so daß zwischen ihnen Wasser zur Kühlung und Moderierung hindurchströmen kann.

3.5.1 Herstellung der Brennstoffkerne

Das Zustandsdiagramm für das System Aluminium-Uran (s. Abb. 21) läßt die Bildung von drei Uran-Aluminium-Verbindungen, nämlich UAl_2, UAl_3 und UAl_4, erkennen. Die Verarbeitung der gebräuchlichen Legierungen aus UAl_4-Al, die einen Urananteil zwischen 16 und 26 Gew.-% haben, verlangen wegen des großen Erstarrungsintervalls und der sich daraus ergebenden Seigerungstendenz (Seigerung = Entmischung der Legierungspartner) sehr spezielle Kenntnisse und Erfahrungen in der Gießtechnik. Bei höheren Legierungen treten durch den wachsenden Anteil der spöden UAl_4-Phase zusätzliche Schwierigkeiten auf, eine gleichmäßige Verteilung annähernd gleich großer UAl_4-Ausscheidungen im Brennstoff zu gewährleisten. Aus diesem Grund strebt man heute bei geforderten Urananteilen über 26 Gew.-% vorteilhaft an, anstelle der Legierung Brennstoffe auf der Basis UAl_3-Al als Cermet zu verwenden.

Brennstoffkerne

Die spätere Verarbeitung erfordert die Herstellung von uranhaltigen Plättchen, den sogenannten „Brennstoffkernen". Bei der Fertigung von Brennstoffkernen aus UAl_4-Al-Legierung geht man beim Schmelzen von Neumetall oder auch von einem gemischten Einsatz mit Rückläufen (Abfall + Ausschuß der Produktion) aus. In einem Tongraphittiegel werden induktiv unter Vakuum zunächst das Aluminium bzw. die bereits als Legierung vorliegenden Rückläufe vollständig aufgeschmolzen und dann das Uranmetall zulegiert, indem man das kleinstückige Uran in einem Graphittauchkorb in die flüssige Schmelze bringt. Nach Auflösung des Urans wird die Schmelze zum Entgasen überhitzt und nach Abkühlung auf die der Legierung entsprechende Gießtemperatur durch Bodenguß in eine wassergekühlte Kupferkokille zu einem Rundbolzen abgegossen. Die Gießtemperatur, die je nach Urananteil zwischen 700 und 1000°C schwankt, und die Abkühlungsbedingungen müssen mit großer Sorgfalt überwacht und eingestellt werden, um trotz der großen Dichteunterschiede der Legierungspartner einen seigerungsfreien homogenen Guß zu erhalten. Auch wenn mit peinlicher Sauberkeit in einem geschlossenen Ofenkessel unter Luftabschluß gearbeitet wird, lassen sich Schmelz- und Metallverluste nicht ganz vermeiden. Der Materialwert des hochangereicherten Urans (etwa DM 36,– pro g U) verlangt die chemische Wiederaufarbeitung zu Uranmetall aller nicht direkt einschmelzbaren Abfälle und Rückstände, die jedoch aufgrund der heute ausgereiften Technik nur in geringen Mengen noch anfallen.

Nach der U-Gehaltsbestimmung der aus dem gegossenen Rundbolzen gesägten zwei Strangpreßbolzen erfolgt das Strangpressen dieser Bolzen zu Flachstreifen mit rechteckigem Querschnitt. Im allgemeinen genügen Aufheizzeiten von ca. 1 bis 2

Stunden auf Temperaturen von 590°C, um fehlerfreie Streifen mit einer rißfreien Oberfläche zu erhalten. Die geforderte Dickentoleranz von ± 0,02 mm läßt sich mit Aufwand auch beim Strangpressen erreichen, jedoch hat sich aus wirtschaftlichen Gründen ein Verfahren entwickelt, nach dem man die Streifen auf ein Vormaß preßt und anschließend auf das eng tolerierte Endmaß kaltwalzt. Aus diesen Platinen werden die Brennstoffkerne (sie werden auch mit „Bildchen" bezeichnet) in der vorgeschriebenen Breite und Länge mit einem Schnittwerkzeug ausgeschnitten; gleichzeitig prägt ein vorgesetztes Werkzeug die Stirnkanten konisch. Treten bei der anschließenden Glühung (eine Stunde bei 550°C) keine Blasen durch Luft-Gaseinschlüsse auf der Oberfläche der Kerne auf und zeigt die γ-Absorptionsmessung und das Röntgenbild einen mit der Spezifikation übereinstimmenden Gesamt-U-Gehalt bei homogener UAl_4-Verteilung, so gehen diese Kerne zur Weiterverarbeitung.

„Bildchen"

Wird anstelle der Legierung ein UAl_3-Al-Cermet verwendet, so darf aus verarbeitungstechnischen Gründen der Brennstoff keine Fremdphasen, wie UAl_2 und UAl_4, enthalten. Die Korngröße zwischen 50 μ und 150 μ ist so gewählt, daß eine gute homogene Verteilung des Urans im Cermet noch erreicht wird, ohne die Umwandlung von UAl_3 mit Aluminium zu UAl_4 durch einen zu großen Feinkornanteil zu begünstigen. Man bevorzugt heute zur Herstellung von UAl_3 ein Lichtbogenschmelzen mit Ausnutzung der exothermen Reaktionen zwischen Uran und Aluminium in einem Lichtbogen-Knopfofen. An den Schmelzprozeß schließt sich eine längere Glühbehandlung an, um noch vorhandene UAl_2-Reste in UAl_3 überzuführen.

Die geglühten UAl_3-Knöpfe werden in einem zweistufigen Mahlverfahren zerkleinert. Nach Absieben auf den für Brennstoffe geeigneten Korngrößenbereich, dessen Einhaltung durch eine Siebanalyse geprüft wird, erfolgt das Einwiegen des pro Kern festgelegten UAl_3-Pulvers mit der entsprechenden Menge Aluminium-Pulver. Nach einem ausreichenden Mischvorgang wird dieses UAl_3-Al-Gemisch zu einem Cermet-Bildchen kaltgepreßt. Die anschließende Prüfung auf Einhaltung der Abmessungen, homogene Verteilung des Brennstoffes und Blasenfreiheit läßt nur einwandfreie Brennstoffkerne zur Weiterverarbeitung kommen.

Cermet-Bildchen

Da UAl_3 pyrophor ist, d. h. bei Luftzutritt leicht verbrennt, muß das Zerkleinern unter Schutzgasatmosphäre in Handschuhkästen erfolgen.

3.5.2 Herstellung der Brennstoffplatten

Die MTR-Brennstoffplatten werden heute ausschließlich nach der „Bilderrahmentechnik" hergestellt. Der metallische oder metallkeramische Brennstoffkern rechteckiger Form wird von einem Aluminiumblech fast gleicher Dicke mit entsprechendem Ausschnitt eingerahmt und mit zwei weiteren Blechen gleicher Außenabmes-

Bilderrahmentechnik

sungen wie das Rahmenblech oben und unten abgedeckt. Die drei den Brennstoffkern umschließenden Bleche werden an den Kanten stellenweise verschweißt, um beim anschließenden Walzen ein gegenseitiges Verschieben der Bleche und des Rahmens zu verhindern.

Das so vorbereitete Walzpaket läßt sich nach Aufwärmen auf 590°C von seiner Anfangsdicke in mehreren Warmwalzstichen mit Zwischenerwärmungen bei kleinen Walzkräften auf die gewünschte Dicke auswalzen (Abb. 40). Durch richtige Abstufung der Dickenabnahme, durch genaues Einhalten der Walztemperatur und durch sorgfältiges Vorbereiten der Walzpakete verschweißt bei der Walzverformung das Hüllmaterial mit dem Aluminium des Brennstoffkernes, so daß es zu einem stoffschlüssigen Übergang vom Brennstoffkern zur Hülle kommt. Nach einem einstündigen Glühtest bei 550°C, der Bindungsfehler sowie Gaseinschlüsse im Brennstoff und im Hüllenmaterial durch Blasenbildung auf der Oberfläche der Platten sichtbar macht, schließt sich das Kaltwalzen an. In mehreren Walzstichen mit etwa 10 % Gesamtverformung wird neben einer Festigkeitssteigerung und Schaffung einer sehr glatten Oberfläche eine genaue Einhaltung der Plattenendstärke in Abstimmung mit der Länge der Brennstoffschicht erreicht.

Die beschnittenen und vermessenen Brennstoffplatten erhalten durch Beizen in Natronlauge und Salpetersäure mit anschließender Behandlung der Oberfläche in kochendem Wasser oder durch Eloxieren eine korrosionsfeste Oberfläche. Von einem Teil der Platten werden Röntgenaufnahmen angefertigt; ein anderer wird durch eine α-Messung auf Kontamination der Oberfläche geprüft.

3.5.3 Montage zu Standard-MTR-Elementen

Die einzelnen Brennstoffplatten in einer Stückzahl von je 12 bis 23 bilden in Verbindung mit den Seitenplatten den kastenförmigen Mittelteil des MTR-Elementes. Neben der Forderung nach engen Toleranzen in den Plattenabständen (Kühlspalte) zur Vermeidung von örtlichen Überhitzungen im Reaktorbetrieb müssen die Brennstoffplatten in den Seitenplatten so befestigt sein, daß eine Lokkerung oder eine Veränderung der Plattenabstände durch thermische und mechanische Beanspruchung während des Betriebes mit Sicherheit ausgeschlossen bleibt. Deshalb werden Nuten für die Aufnahme der Brennstoffplatten senkrecht oder bei gebogenen Platten unter einem ihrer Krümmung entsprechenden Winkel in die Seitenplatten eingefräst.

In einer Montagevorrichtung werden jeweils nach Einschieben einer Brennstoffplatte in die Nuten der fest eingespannten linken und rechten Seitenplatte mit Hilfe eines Einwalzwerkzeuges mit profilierten Rollen die Nuten so verengt, daß die Brennstoffplatte fest eingeklemmt wird. Der so entstandene Brennstoffkasten (ohne die Endstücke) wird nach Fertigstellung sorgfältig vermessen.

Nach Kontrollieren der Plattenabstände und Eingravieren der Elementnummer in die Seitenplatten wird der Brennstoffkasten mit den zur Handhabung und Fixierung im Reaktor erforderlichen Kopf- und Fußteilen zum einsatzbereiten Element ergänzt.

3.5.4 Herstellung von Elementen für fortgeschrittene Reaktorkonzepte

Fortgeschrittene Reaktorkonzepte benutzen mehr und mehr Brennelementformen, die von der oben beschriebenen des Stan-

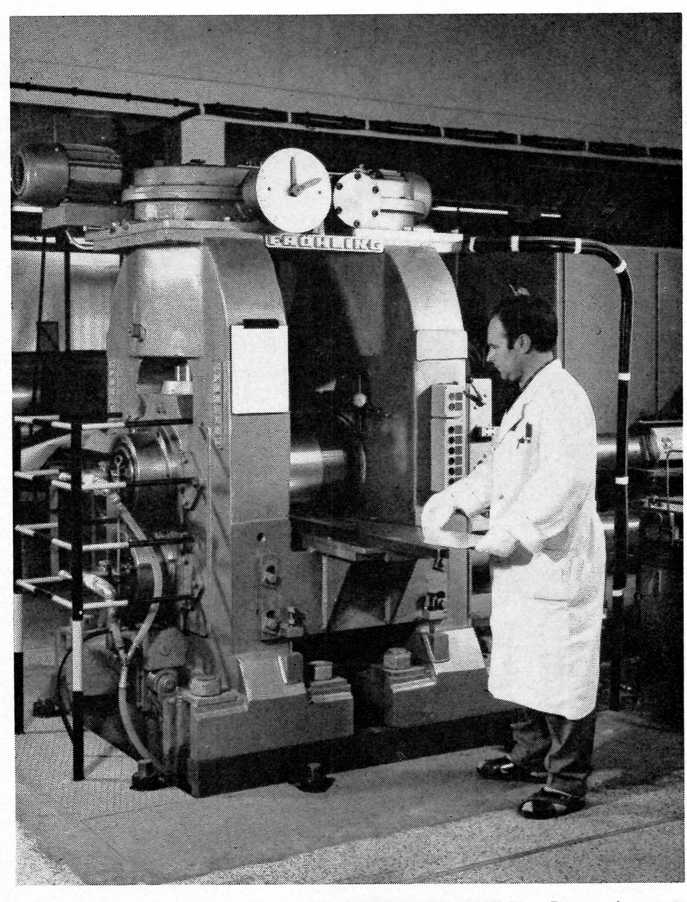


Abb. 40 Auswalzen von Brennstoffplatten für MTR-Typ-Brennelemente. Foto: NUKEM

dard-MTR-Elementes abweichen. Sie verwenden ebenfalls stets als Baustein Brennstoffplatten, die jedoch in Abmessung und Zusammensetzung stark variieren können. Ihr Herstellungsgang gleicht im Prinzip jedoch stets dem oben geschilderten. Als Beispiel für solche fortgeschrittenen Elemente sollen die rohrförmigen Elemente des Dido-Reaktors in Jülich und die des deutsch-französischen Hochflußreaktors RHF in Grenoble näher beschrieben werden.

Rohrförmige Elemente

Abb. 17 zeigt ein Element für den Dido-Reaktor. An die Stelle des kastenförmigen Mittelteils treten bei diesem Element 4 konzentrische Brennstoffrohre in einem fünften Schutzrohr. Je drei etwa 650 mm lange gebogene Brennstoffplatten werden mit dem Elektronenstrahl stumpf aneinander geschweißt. Da der Durchmesser der Rohre von innen nach außen zunimmt, muß auch die Breite der Platten entsprechend ansteigen. Zur Einhaltung der Abstände zwischen den Rohren stecken diese oben und unten in kammförmig ausgebildeten Abstandshaltern. Ober- und Unterteil des Elementes sind länger und normalerweise wesentlich komplizierter ausgebildet als beim Standard-MTR-Element.

RHF-Element

Der kürzlich in Grenoble in Betrieb genommene Reaktor RHF (= **R**éacteur à **H**aut **F**lux, ein deutsch-französisches Gemeinschaftsprojekt) soll sehr hohe Neutronenflüsse erzeugen. Der Kern dieses Reaktors besteht aus einem einzigen Brennelement, das in Abb. 18 dargestellt ist. 280 Brennstoffplatten sind evolventenförmig zwischen zwei konzentrischen Ringen angeordnet, deren ungefähre Abmessungen folgendermaßen sind: Außendurchmesser Innenrohr 274 mm, Innendurchmesser Außenrohr 398 mm. Die ca. 900 mm langen Platten haben eine Brennstoffzone von ca. 800 mm und außerhalb derselben je eine Absorberzone mit einer Borverbindung (B_4C). Sie werden nach dem Biegen in die vorbereiteten Nuten des Innen- und Außenrohres eingesetzt. Die Verbindung von Platten und Rohr erfolgt ebenfalls durch Elektronenstrahlschweißen. Innen und außen werden je 25 Schweißnähte gelegt. Zur Kühlwasserführung im Reaktor werden an das Innen- und Außenrohr je 2 Endstücke komplizierter Ausbildung angeschweißt. Wegen der im Vergleich zum MTR-Element wesentlich erhöhten Beanspruchungen im Betrieb werden festere und korrosionsbeständigere Al-Legierungen verwendet.

3.6 Herstellung von Elementen mit plutoniumhaltigem Brennstoff

W. Stoll

Wie schon beschrieben, bildet sich in jedem Reaktor, dessen Brennelemente neben U-235 auch noch U-238 enthalten, Plutonium. Bei der Wiederaufarbeitung der entladenen Brennelemente wird in Zukunft mehr und mehr von diesem Element anfallen,

dessen Verwendung die weitere Entwicklung der Kernenergie beeinflussen wird. Grundsätzlich kann man dieses Plutonium in thermischen Reaktoren verwenden (sogenannte Pu-Rückführung) oder in den in Entwicklung befindlichen Brutreaktoren, von denen zumindest der Schnelle Brüter auf den Einsatz von Plutonium zugeschnitten ist.

3.6.1 Besonderheiten der Verarbeitung

Der Aufbau der Pu-Isotope im Reaktor ist in Abb. 41 dargestellt. Während des Abbrandes erhöht sich die Konzentration des Pu-239 im abbrennenden Spaltstoff, so daß dies immer stärker zum Wärmelieferanten wird und gegen Ende des Abbrandes in Leichtwasserreaktoren mehr als 1/3 der Spaltenergie erzeugt. Da sich im Reaktor auch noch höhere Isotopen bilden, liegt im abgebrannten Brennstoff schließlich ein Plutonium-Isotopengemisch vor mit einem großen Anteil an Pu-239 und abnehmenden Anteilen an 240, 241, 242 und 238 (aus dem U-235 gebildet), dessen Zusammensetzung von der Höhe des Abbrandes, dem Reaktortyp und anderen Einflüssen abhängt. Eine grobe Übersicht über die zu erwartende Verteilung gibt Abb. 42 (siehe auch Tab. 10).

Pu-Isotopengemisch

Der Wert des Plutoniums als spaltbarer Stoff resultiert im wesentlichen aus den spaltbaren Isotopen 239 und 241 sowie in geringem Ausmaß aus Pu-240, das einerseits im Schnellen Reaktor gespalten, anderseits im thermischen Reaktor zu spaltbarem Pu-241 aufgebaut wird.

Hohe -Aktivität

Vom Pu-241 abgesehen, das als β-Strahler zu Americium-241 zerfällt, handelt es sich im wesentlichen um α-Strahler, die auch noch niederenergetische Gammastrahlen aussenden und – besonders Pu-240 – unter Neutronenaussendung zu spontaner Spaltung neigen. Höhere γ-Energien liefert das in sehr kleiner Konzentration vorkommende Isotop Pu-236. Pu-239 zerfällt zu einem kleinen Teil ebenfalls unter Bildung hochenergetischer γ-Strahlen. Schließlich liefern einen gewichtigen Anteil der γ-Dosis auch die Folgeprodukte des Pu-241-Zerfalls, nämlich U-237 und Am-241.

Hohe Giftigkeit

Zusätzlich zu dem für den Umgang mit γ-Strahlen erforderlichen Schutz durch Abschirmung erfordert Plutonium weitere Vorsichtsmaßregeln. Die hohe spezifische Aktivität (aus höher abgebranntem Wasserreaktorbrennstoff kommendes Pu-Isotopengemisch hat eine spezifische Aktivität von ~ 1 Curie pro g) und die Eigenschaft, sich im Körper in den Knochen anzusammeln und dort mit einer biologischen Halbwertzeit von 200 Jahren zu verbleiben, verbietet den direkten Kontakt mit offenem Plutonium bei der Verarbeitung.

Die hohe spezifische Aktivität führt bei allen Aggregatzuständen plutoniumhaltiger Verbindungen und Mischungen, bei denen die Kohäsionskräfte relativ schwach sind, dazu, daß durch α-Rückstoß Partikeln aus der Oberfläche herausgeschleudert und als Aerosol

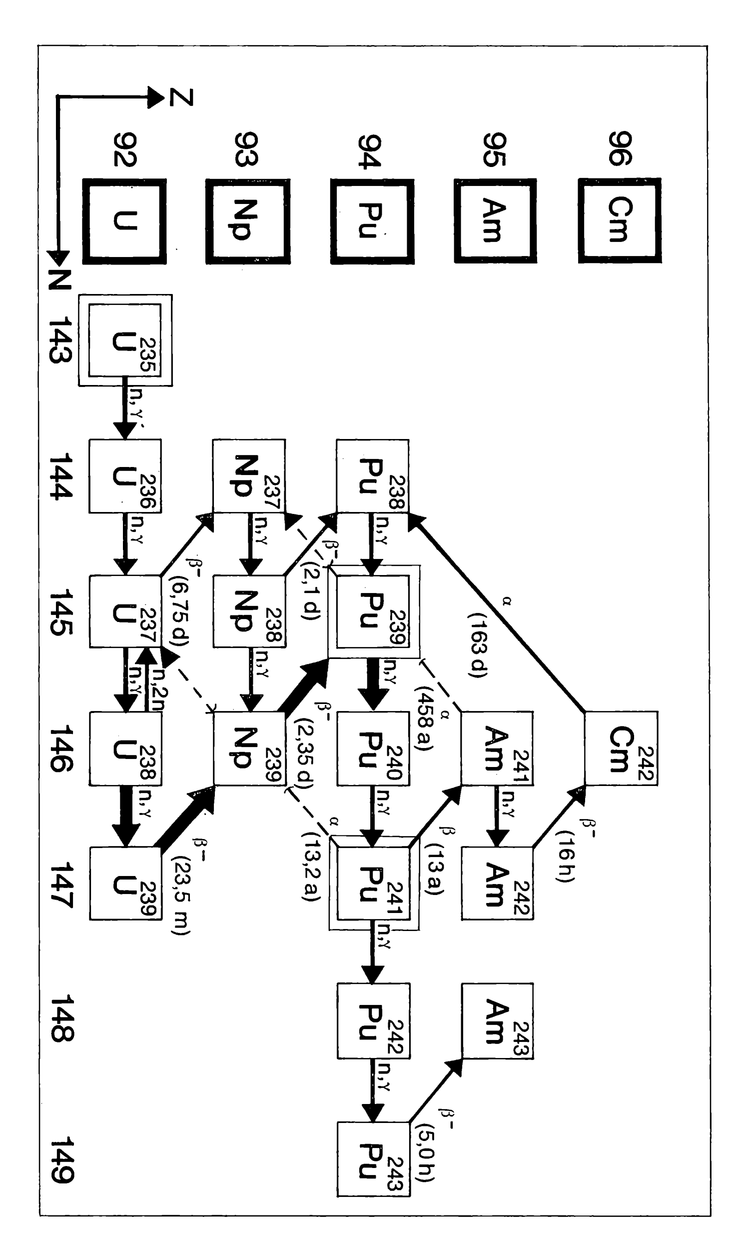


Abb. 41 Aufbau der Plutonium-Radionuklide.

in der umgebenden Atmosphäre verteilt werden. Dies gilt für alle festen Verbindungen von Plutonium mit Ausnahme von Legierungen und Gläsern, insbesondere für die Korrosionsprodukte auf Metall und für die heute am meisten verwendeten keramischen Brennstoffe, wie Oxide, Karbide und Nitride. Als Folge der Rückstoßenergie erfolgt auch eine Tiefenimprägnation der meisten mit Plutonium in Berührung kommenden Gegenstände bis in die

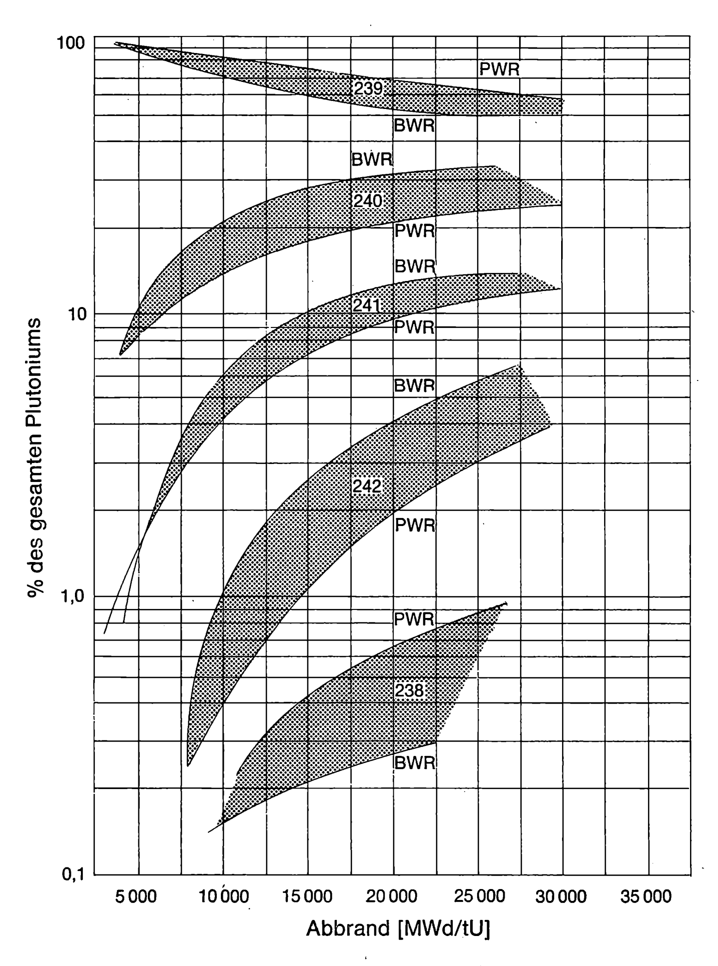


Abb. 42 Isotopenzusammensetzung von Plutonium aus Leichtwasserreaktoren.

Gegend der Reichweite der α-Partikeln, so daß eine Dekontamination erschwert oder sogar unmöglich wird.

Die vom Plutonium ausgesandten α-Strahlen können mit leichten Elementen – hier insbesondere mit Beryllium, Fluor, Lithium und den Sauerstoffisotopen 17 und 18 – unter Aussendung hochenergetischer Neutronen reagieren. Bei der Hantierung von Plutoniumeinzelmengen über 1 kg ist daher im allgemeinen bereits eine zusätzliche Neutronenabschirmung notwendig.

Kritikalität

Während die kritische Masse von Pu-239 in trockenem Zustand als Metall bei 10 kg liegt, sind in wässriger Lösung bereits 509 g kritisch. In der technischen Hantierung ergeben sich daraus mannigfache Einschränkungen in der Form der Geräte, ihrer Anordnung zueinander, sowie der Konzentration der Lösungen, insbesondere in Gegenwart von Moderatoren. Während Milligramm-Mengen von Plutonium noch in gut ziehenden Abzügen hantiert werden können, erfolgt die Handhabung technischer Mengen ausschließlich in geschlossenen Handschuhkästen, die gegenüber der Umgebung einen Unterdruck aufweisen (siehe Abb. 43). Üblicherweise setzt man auch den Arbeitsraum, in dem sich die Handschuhkästen befinden, gegenüber der Außenatmosphäre unter leichten Unterdruck, um eine zweite Barriere gegen einen möglichen Aktivitätsaustritt zu schaffen.

Handschuhkästen

Sieht man vom Plutonium-Hexafluorid (PuF_6) als einziger verdampfbarer Verbindung ab, so enthält die Luft der Handschuhkästen das Plutonium stets in Form fester Partikeln, die sich durch Absolutfiltration der Handschuhkastenatmosphäre entfernen lassen. Wirksame Absolutfilter erreichen einen Wirkungsgrad von 99,98 %, bezogen auf die für die Inkorporation gefährlichste Teilchengröße von 0,3 μ, so daß bei dem zu erwartenden Konzentrationsgefälle zwischen staubiger Luft im Handschuhkasten und Außenatmosphäre von $1:10^9$ zwei bis drei Absolutfilter in Serie erforderlich sind. Verwundbarster Teil der Handschuhkästen sind die armlangen, aus zähem Natur- oder Synthesekautschuk bestehenden Arbeitshandschuhe. Diese Handschuhe beschränken außerdem die Reichweite, die zu bewegenden Gewichte und die Arbeitsgeschwindigkeit im Handschuhkasten. Bei Hantierung technischer Mengen wurde an verschiedenen Stellen schon mit Erfolg eine Teilmechanisierung der Arbeitsvorgänge eingeführt, während vollmechanisierte Anlagen z. Z. entwickelt werden.

3.6.2 Herstellung von metallischem und keramischem Brennstoff

Während für die Fertigung von Nuklearwaffen Plutonium als reines Metall oder niedrig legiert eingesetzt wird, hat dies als Kernbrennstoff in reiner Form keine Bedeutung. In den Anfängen der Plutonium-Rückführung, zwischen 1959 und 1964, wurde es verschiedentlich als Plutonium-Aluminium-Legierung mit Plutoniumgehalten zwischen 1 und 6 % in Form zylindrischer Stäbe in Aluminium- oder Zircaloy-Hüllen eingeschweißt und in Wasser-

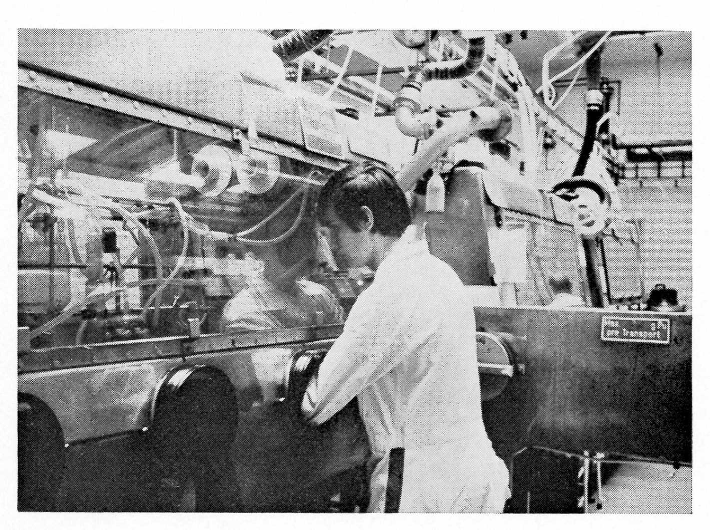


Abb. 43 Handschuhkästen zur Handhabung von Plutonium. Die gesamte Verarbeitung erfolgt heute noch in derartigen, hermetisch dichten Handschuhkästen. Foto: ALKEM

reaktoren eingesetzt. Das ungünstige Bestrahlungsverhalten und die daraus resultierenden niedrigen Abbrände haben jedoch einen großtechnischen Einsatz in dieser Form verhindert. Die Herstellung von Plutoniummetall sei daher nur stichwortartig dargestellt:

Pu-Metall

Plutonium fällt aus der Aufarbeitung als wässrige Nitratlösung mit Gehalten zwischen 100 und 300 g pro Liter an. Daraus wird das Plutonium als 3 oder 4wertiges Plutoniumoxalat gefällt. Das getrocknete Oxalat wird zum Oxid kalziniert, wobei niedrige Kalzinationstemperaturen (um 350°C) ein reaktionsfähiges Oxid ergeben, das mit gasförmigem Fluorwasserstoff zum Tetrafluorid umgewandelt wird. Durch Umsatz mit Kalzium- oder Magnesiumspänen entsteht daraus das reine Metall (Dichte über 19 g/cm³), das durch Elektrolyse in Salzschmelzen noch gereinigt werden kann. In feinverteiltem Zustand an Luft ist das Metall pyrophor und hat zwischen Raumtemperatur und seinem Schmelzpunkt bei 639°C fünf Umwandlungspunkte, bei denen es erhebliche Volumenänderungen erleidet. Außer mit einigen Übergangsmetallen legiert es sich sehr rasch mit fast allen bekannten Metallen und ist daher als Kernbrennstoff nur schwer einsetzbar, weil es mit der Hülle reagiert. Selbst die Versuche, es als niedrigschmelzende Pu-Cer-Kobalt-Legierung in Tantal-Hüllrohren flüssig als

Reaktorbrennstoff einzusetzen, hat bisher keinen bleibenden Erfolg gebracht.

Pu-Oxid

Auch bei oxidischem Brennstoff beginnt die Herstellung mit der Oxalatfällung aus der 4wertigen Pu-Lösung. Dieser Weg ist der einfachste, obwohl auch schon die Fällung als 3wertiges Oxalat und als Hydroxid, das eine gleichzeitige Ausfällung von Uran als Diuranat gestattet und eine sehr feine Verteilung ergibt, technisch erprobt wurde.

Sowohl in thermischen wie in schnellen Reaktoren wird Plutoniumoxid nur mit einem überwiegenden Anteil an Uranoxid vermischt eingesetzt. Es wird dabei eine möglichst gute Verteilung des Plutoniums angestrebt. Während man ursprünglich eine Feinverteilung bis in molekulare Dimensionen durch gemeinsame Ausfällung (Kopräzipitation) verlangte, werden heute Plutoniumoxidpartikeln im Mittel bis zu 40 μ Durchmesser mit Maximalgrenzen bei 200 μ Durchmesser im Uranoxid zugelassen, Mit UO_2 bildet PuO_2 eine lückenlose Reihe von Mischkristallen.

Andere Pu-Verbindungen

Für die Anwendung im Schnellen Brüter und in der Raumfahrt können Karbide, Karbonitride und Nitride in absehbarer Zeit von Bedeutung sein. In allen Fällen handelt es sich um Mischverbindungen mit einem überwiegenden Anteil an Uran. Das Herstellungsverfahren schließt sich daher an die bei Urankarbid geübte Praxis an, wonach die Oxide mit Kohlenstoff bei Temperaturen zwischen 1300 und 1800°C zu Karbiden umgesetzt werden. Bei Temperaturen zwischen 1300 und 1500°C lassen sich Karbide im Stickstoffstrom in Nitride überführen. Für reinste Verbindungen ist die Synthese aus den Elementen ein gangbarer Weg.

Es verdient hervorgehoben zu werden, daß PuN im Gegensatz zu analogen Uranverbindungen auch bei hohen Temperaturen einphasig und kubisch ist. Es wurde daher bereits als Cermet-Brennstoff für nukleare Raketenantriebe vorgeschlagen.

3.6.3. Herstellung der Brennstäbe und Brennelemente

Für thermische Reaktoren (= Pu-Rückführung)

Der bei der Rückführung von Plutonium für Brennstäbe und Brennelemente thermischer Reaktoren verwendete Fabrikationsweg folgt weitgehend dem Herstellungsverfahren, wie es auch für Uranoxid-Brennelemente für Leichtwasserreaktoren angewandt wird. Deshalb soll im folgenden nur auf die wesentlichen Unterschiede dieser beiden Verfahrenswege eingegangen werden. Wie bereits beschrieben, erfolgt die Handhabung des offenen Plutoniums ausschließlich in Handschuhkästen. Dieser Tatsache muß man sich für das Verständnis der im folgenden beschriebenen Herstellungsschritte ständig bewußt sein.

U-Pu-Vermischung

Der erste Fertigungsschritt ist die Vermischung von Plutoniumoxid- und Uranoxidpulver, wobei eine möglichst homogene Mischung mit Teilchengrößen des PuO_2 von ca. 10 μ angestrebt wird. Der Nachweis, daß es nicht zur Bildung von PuO_2-Nestern in der UO_2-Matrix gekommen ist, läßt sich an gepreßten Tabletten

relativ leicht durch sog. α-Auto-Radiogramme führen. Dies ist ein Verfahren, bei dem die Belichtung einer entsprechend präparierten Fotoplatte durch die aus dem Plutonium stammenden α-Teilchen ausgenutzt wird. Die Tablettengrünlinge werden auf dem üblichen Weg hergestellt. Während des Sintervorganges bei Temperaturen zwischen 1500 und 1650°C geht das Plutoniumoxid mit 25-50 % in homogene Mischkristalle mit dem Uranoxid über. In stark reduzierender Atmosphäre oberhalb Temperaturen von 1650°C kann es zu Sesquioxidbildung kommen, wobei möglicherweise auch ein katalytischer Einfluß von vorhandenen Eisenspuren die Ursache sein kann.

Längeres Lagern an Luft kann dazu führen, daß sich feinverteilte Aerosole an den Tablettenoberflächen bilden, so daß derartige Tabletten beim Einfüllen in die Hüllrohre an den Füllöffnungen größere Kontaminationsprobleme hervorrufen als frisch hergestellte.

Einfüllen der Pellets ohne Kontamination

Überhaupt ist das kontaminationsfreie Einfüllen der Tabletten in die Hüllrohre bzw. die sorgfältige Dekontamination vor dem Verschweißen der Endverschlüsse mit dem Hüllrohr ein besonderes spezifisches Problem der Brennstabfertigung mit plutoniumhaltigen Brennstoffen. Die Tabletten werden vorzugsweise unter Vakuum in die Hüllrohre eingefüllt, um bei späterem Abpumpen von sonst vorhandenen Gasresten das Mitreißen von Plutoniumoxidteilchen zu vermeiden. Eventuell in die Schweißnaht eingebettetes Plutoniumoxid läßt sich nicht mit üblichen Mitteln entfernen, weshalb besonderes Augenmerk auf die Dekontamination der Hüllrohrenden vor dem Verschweißen gelegt wird. Der fertig verschweißte Brennstab wird auf Kontamination geprüft und kann dann unter Anwendung geringerer Vorsichtsmaßregeln außerhalb des Handschuhkastens gehandhabt werden. Die Feinverteilung des Plutoniums innerhalb der Brennstäbe kann mit Hilfe der γ-Eigenstrahlung, die die Hüllrohrfläche durchdringt, oder mit Hilfe von Neutronenradiographie bestimmt werden. Wenn die fertigverschweißten Zirkaloy-Brennstäbe mit einer Oxidhaut versehen werden sollen, so ist nach dem üblichen Autoklavprozeß beim Dampfablaß eine Aktivitätsprüfung und Absolutfiltration des Dampfes erforderlich.

Pu-Dekontamination vor dem Schweißen

Die auf Kontaminationsfreiheit geprüften Brennstäbe können ebenso zu Brennelementen zusammengebaut werden, wie dies bei normalen Uranoxid-Brennstäben der Fall ist. Aus Sicherheitsgründen für das hantierende Personal erfolgt der Zusammenbau der Brennstäbe zu den Brennelementen jedoch ausschließlich in Räumen, die über Absolutfilter absaugbare Atmosphäre besitzen, und wo eine gewisse Mindestumwälzmenge der Raumluft gewährleistet ist.

Für schnelle Reaktoren

Der im Vergleich zum Brennstoff für die thermische Rückführung sehr viel höhere Plutonium-Gehalt (12-30 %) und der wesentlich geringere Durchmesser der Tabletten (5-6 mm) rufen bei der Fer-

tigung von Brennstäben für schnelle Reaktoren erhebliche Fertigungsprobleme hervor. Neben den Plutonium-spezifischen ungünstigen Einflüssen wird allein durch die große Zahl der herzustellenden Tabletten, wobei eine Tablette nur ca. 1 g wiegt, die wirtschaftliche Tablettenfertigung sehr schwierig. Darüber hinaus erschweren die aus Auslegungsgründen geforderten Sinterdichten zwischen 80 und 85 % der theoretischen Dichte den Herstellungsprozeß, so daß das Verfahren mit Hilfe der Vibrationsverdichtung von Partikelschüttungen hier durchaus konkurrenzfähig sein kann. Die Sintertemperaturen liegen etwas höher als für Tabletten mit geringerem Plutoniumanteil, da für den Schnellbrüter-Brennstoff ein hoher Mischkristallanteil gefordert ist. Das übliche spitzenlose Schleifen der Tabletten nach dem Sintern zur Erzielung der geforderten Durchmessertoleranzen bereitet wegen des zu beseitigenden und aufzubereitenden Schleifschlammes mit hohem Plutonium-Gehalt erhebliche Kritikalitätsprobleme, die auch in die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens eingreifen. Hier würde das Sintern der Tabletten auf Maß sehr große Vorteile bringen.

Eine Folge der niedrigen Tablettendichte ist ein relativ hoher Wassergehalt im Gleichgewichtszustand unter Normalatmosphäre in den Tabletten. Da die Tabletten im eingefüllten Zustand im Brennstab nur sehr geringe Feuchtigkeitsgehalte aufweisen dürfen, müssen sie im Vakuum getrocknet werden, bevor der Einfüllvorgang in die Hüllrohre ablaufen kann. Besondere Sorgfalt und damit strenge Fertigungskontrollen erfordert die durch den Brennstabaufbau gewählte Aufeinanderfolge von unterer Brutstoffzone, mittlerer Spaltstoffzone und oberer Brutstoffzone. Als Kontrollmaßnahmen werden auch hier die Gammagraphie und Neutronenradiographie für künftige Fertigungen Verwendung finden. Während es auch schon bei der Herstellung von Brennstäben für die thermische Rückführung sehr schwer ist, mit der üblichen Handschuhkastentechnik einigermaßen preisgünstig fertigen zu können, ist es bei der Herstellung der Brennstäbe für schnelle Reaktoren eine unabdingbare Forderung, von der manuellen Handschuhkastentechnik auf eine Teilmechanisierung und Automatisierung des gesamten Verfahrensablaufes überzugehen. Selbstverständlich sind zur Ausnutzung solcher mehr oder weniger automatisierter Fertigungsprozesse entsprechend große Durchsätze durch die Anlagen erforderlich.

Teilmechanisierung – Automatisierung

In Deutschland wird z. Z. an der Erprobung einer Prototyplinie für die teilautomatische Herstellung von Brennstäben sowohl für Plutonium-Rückführung wie für schnelle Reaktoren intensiv gearbeitet. Die Erfahrungen dieser noch relativ kleinen Anlage sollen dazu dienen, spätere großtechnische automatisierte Fertigungslinien aufzubauen.

Eine spezifisch Schnellbrüter-bezogene Besonderheit ist für die Montage der Brennstäbe zu Brennelementen zu erwähnen. Wegen der großen Plutonium-Mengen (ein Element kann bis zu 15 kg

Plutonium enthalten) kann sich die Notwendigkeit ergeben, manuell unter Neutronenabschirmung zu arbeiten oder zu einem fernbedienten Montagevorgang überzugehen. Diese Schwierigkeit wird um so größer, je länger der Zeitraum ist, der seit der Abtrennung des Americiums aus dem Plutonium verstrichen ist, da sich dieser starke Gammastrahler von selbst wieder bildet. Man wird also bemüht sein, die Brennstäbe möglichst „frisch“ komplett zu Brennelementen zu verarbeiten.

4. Transport von Kernbrennstoffen

H. Baatz

4.1 Allgemeine Probleme des Transports radioaktiver Stoffe

Strenge Vorschriften

Die strengen Vorschriften beim Umgang mit radioaktiven Stoffen gelten verstärkt auch für die Zeit, in der sich das radioaktive Material auf dem Transport befindet. Die Behälter hierfür müssen so sicher ausgebildet sein, daß auch bei extremen Verhältnissen eine Gefährdung der Umwelt nicht eintreten kann.

2 Grundtypen der Behälter

Man unterscheidet zwei Grundtypen von Behältern für den Transport radioaktiver Materialien:

Typ A: Dieser Behälter darf nur für geringe Mengen radioaktiver Stoffe benutzt werden, und zwar in Mengen, die von ihrer Gefährlichkeit abhängen. Der Behälter wird darauf getestet, daß er unter normalen Transportbedingungen nicht zerstört werden kann, während man einer Zerstörung bei Unfällen aufgrund der sehr geringen denkbaren Gefährdung der Öffentlichkeit wegen der geringen in ihm enthaltenen Mengen in Kauf nimmt.

Typ B: Diese Behälter sind auch für größere Mengen radioaktiver Stoffe gedacht. Sie müssen deshalb so gebaut sein, daß sie auch einem Unfall widerstehen. Die angewandten Testkriterien für solche Behälter sind sehr hart. Sie müssen überstehen:
- 1 Fall aus 9 m Höhe auf eine unnachgiebige Oberfläche;
- 1 Fall aus 1,2 m Höhe auf einen Dorn;
- 1 Feuer von 30 Minuten Dauer und einer Temperatur von 800°C.
- 1 Untertauchen in Wasser während 8 Stunden (nur bei Behältern für Kernbrennstoffe).

Nach diesen Tests müssen die Behälter noch in der Lage sein, den Kernbrennstoff innerhalb ihrer inneren Umschließung zurückzuhalten, außerdem muß die Abschirmung ihre Schutzfunktion aufrechterhalten können.

Da bei frischen, also unbestrahlten Kernbrennstoffen bei Anwesenheit eines Moderators (etwa Wasser) das zusätzliche Risiko einer unkontrollierten Kettenreaktion einkalkuliert werden muß, werden Behälter für deren Transport, die z. B. bei Uran in der Regel nur vom Typ A zu sein brauchen, auf jeden Fall auch den Typ-B-Tests unterworfen. Falls es sich um Typ-A-Behälter handelt, brauchen sie nach diesen Tests nicht mehr unbedingt den Inhalt

zurückzuhalten, sie müssen jedoch auf jeden Fall eine unkontrollierte Kettenreaktion verhindern.

Internationale Vorschriften

Diese Vorschriften wurden von der Atomenergie-Agentur in Wien unter Mitarbeit von Experten aus aller Welt entwickelt und sind in den „Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials", Safety Series No. 6, Wien 1967, IAEA, niedergelegt. Sie werden praktisch von allen Ländern der Welt respektiert, sei es, daß sie direkt in die entsprechenden Gesetze eingebaut worden sind, oder aber daß sie in der Praxis angewandt werden. Auch internationale Transportorganisationen (IATA, IMCO, Eisenbahnen) haben für ihren Bereich diese Vorschriften übernommen. Alle Transporte von Kernbrennstoffen werden unter diesen Vorschriften abgewickelt.

4.2 Transport unbestrahlter Kernbrennstoffe

Bei den unbestrahlten Kernbrennstoffen kann man 3 Gruppen unterscheiden:

UF_6-, UO_2-Transporte

Die erste Gruppe besteht aus UF_6 und UO_2. Der Transport von UF_6 ist in gewissem Umfang bereits zur Routine geworden. Natürliches UF_6 wird zwischen Europa und Amerika sowie in Amerika selbst bereits in Mengen von mehreren tausend Tonnen pro Jahr transportiert, da es das Ausgangsmaterial für die Herstellung von LWR-Elementen darstellt. Da ein Kritikalitätsrisiko nicht besteht, sind die Behälter nur der Tatsache angepaßt, daß UF_6 ein, wenn auch nicht sehr gefährliches Gift darstellt. Der Transport erfolgt meist per Schiff.

Ein kräftiger Stahlzylinder enthält das UF_6. Er ist von einem Schutzbehälter umschlossen, der garantiert, daß die oben angeführten Unfalltests überstanden werden. Ein solcher Behälter kann ca. 1,5 t angereichertes Uran transportieren (siehe Abb. 23).

Hochangereichertes UF_6 wird in wesentlich kleineren Behältern, die jedoch denen für niedrig angereichertes UF_6 ähnlich sind, aus Amerika bezogen und wegen seines Wertes in der Regel per Luftfracht befördert.

Uranoxid als Zwischenprodukt der Brennelementherstellung wird in größeren Mengen auch innerhalb Europas transportiert. Die hierfür verwendeten Behälter müssen natürlich ebenfalls den geschilderten Unfalltests standhalten.

Pellets, Stäbe, Elemente

Die zweite Gruppe besteht aus Uran-Pellets, -Stäben und Brennelementen. Diese haben nicht nur einen erheblichen Wert, sondern stellen auch empfindliche bzw. zerbrechliche Gebilde dar. Sie müssen deshalb während des Transportes vor Beschädigungen durch Stoß, Vibration usw. geschützt werden. Dieser Schutz tritt zusätzlich zu dem oben beschriebenen Unfallschutz hinzu. Erreicht wird dies durch sorgfältige Fixierung der Produkte innerhalb des Behälters und ggf. durch den Einbau von Stoßdämpfern

und Vibrationsschutz. Abb. 44 zeigt einen Behälter zum Transport von Druckwasserelementen.

Plutonium Als dritte Gruppe schließlich muß der Transport von Plutonium besprochen werden. Er verlangt wegen seiner hohen Radiotoxizität besonders scharfe Sicherheitsvorkehrungen. Es werden ausschließlich Behälter vom Typ B verwandt. Reines Plutonium als Ausgangsstoff für die Brennelement-Herstellung wird entweder

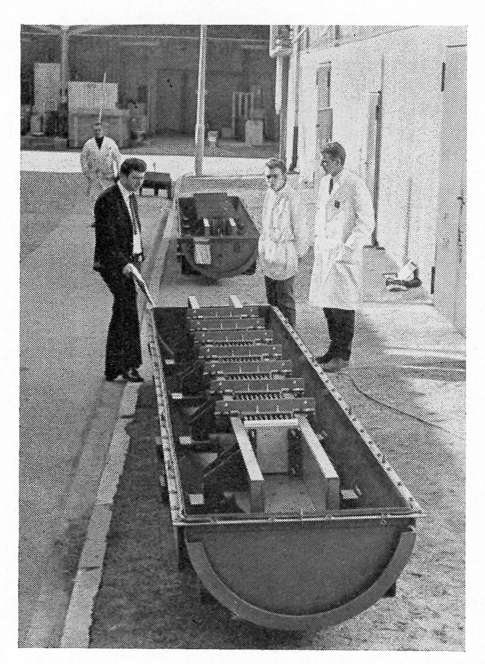


Abb. 44 Blick in einen Transportbehälter zum Transport von unbestrahlten Brennelementen oder Brennstäben. Fest montiert, um vor dem Verrutschen gesichert zu sein, befindet sich in dem Behälter auf Stoßdämpfern gelagert ein Bündel Brennstäbe.
Foto: Transnuklear

in der Form von Oxidpulver oder als wässrige Plutonium-Nitrat-Lösung bezogen. Besonders der Transport von Nitrat-Lösung verlangt erheblichen Aufwand, da zu dem Problem von Kritikalität und Giftigkeit noch das des durch Radiolyse verursachten Druckaufbaus innerhalb des Behälters hinzukommt. (Zerlegung des Wassers durch Einwirkung der Strahlung in H_2 und O_2). Des-

wegen sind die Behälter für das Plutonium-Nitrat mit einem inneren Druckgefäß ausgestattet. Außerdem wird die Transportzeit begrenzt und überwacht.

Stäbe und Brennelemente mit Plutonium werden ähnlich wie Uranverbindungen transportiert, da das Plutonium in die Hülle dicht eingeschweißt ist. Jedoch muß zusätzlich eine unfallsichere, dichte Umschließung angebracht werden.

4.3 Transport bestrahlter Kernbrennstoffe

Unbestrahlte Brennstoffe weisen nur geringe, bei Plutoniumhaltigem Brennstoff auch höhere Strahlungsintensitäten auf. Beim Transport entladener Brennelemente muß man jedoch der sehr hohen γ-Strahlung Rechnung tragen. Der Transport bestrahlter Kernbrennstoffe ist deshalb besonders aufwendig. Wegen der starken Strahlung muß der Behälter eine ausreichende Abschirmung enthalten, wodurch er ein erhebliches Gewicht erhält. Dieser sehr schwere Behälter muß die oben beschriebenen Unfalltests überstehen, die besonders aufgrund der beim Fall auftretenden großen Kräfte extreme Anforderungen an das Material stellen. Ebenso ist der Feuerversuch in bezug auf die Bleiabschirmung gegen γ-Strahlen und wegen der notwendigen Dichtungen kritisch.

Starke Abschirmung

In der Regel sind die Behälter wie folgt aufgebaut:
Eine innere Stahlhülle, die gleichzeitig die dichte Umschließung darstellt, ist von einer Bleiabschirmung umgeben. Diese wiederum ist durch eine äußere Stahlhaut geschützt, die ggf. zusätzliche Vorrichtungen zur Abgabe der im Behälter erzeugten Wärme (Rippen oder Stifte) trägt. Je nach den Anforderungen ist zusätzlich ein besonderer Feuerschutz oder eine weitere Abschirmung gegen die möglicherweise zusätzlich auftretende Neutronenstrahlung notwendig.

Abfuhr der Wärme

Behälter, die auch zur Abschirmung anstelle von Blei Stahl verwenden, sind in begrenzter Anzahl ebenfalls im Gebrauch, während sich abgereichertes Uran zu Abschirmungszwecken aufgrund des hohen Preises für das Metall bisher nur in Spezialfällen durchsetzen konnte.

Behälter für den Transport bestrahlter Brennelemente aus Forschungsreaktoren gibt es in genügender Anzahl; man kann sagen, daß der Transport hierfür bereits Routine geworden ist. Als Beispiel ist ein Behälter abgebildet, wie er vorwiegend in Europa eingesetzt wird (Abb. 45).

Da in Deutschland Kernkraftwerke bislang praktisch ausschließlich mit Leichtwasser-Reaktoren ausgerüstet wurden und man sagen kann, daß sich die Leichtwasser-Reaktoren in der ganzen Welt durchgesetzt haben, soll hier lediglich der Transport von Leichtwasserelementen behandelt werden.

Neben der starken Strahlung ist die durch den Zerfall der in den bestrahlten Brennelementen enthaltenen Spaltprodukte ent-

stehende Wärme erheblich. So gibt trotz halbjähriger Abkühlzeit ein Element noch ca. 4 kW beim Siedewasserreaktor und ca. 10 kW beim Druckwasserreaktor ab.

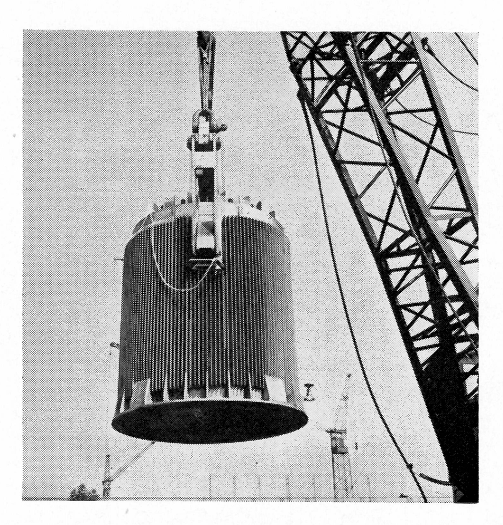


Abb. 45 Transportbehälter für den Transport bestrahlter Elemente aus Forschungsreaktoren vom MTR-Typ. Die außen sichtbaren Kühlrippen sollen die Abführung der Nachzerfallswärme der Spaltprodukte erleichtern.
Foto: Transnuklear

Die Abb.46 gibt ein Beispiel für einen derartigen Behälter, der als Universal-Behälter für Brennelemente aus europäischen Prototyp-Kraftwerken (bis max. ca. 300 MWe) konzipiert ist. Er könnte also in Deutschland für Brennelemente aus den Kernkraftwerken Gundremmingen, Obrigheim, Lingen, MZFR Karlsruhe sowie HDR Kahl benutzt werden. Für Brennelemente mit sehr hohen Abbränden, wie sie für die modernen kommerziellen Kraftwerke geplant sind, können diese Behälter jedoch nur mit einer zusätzlichen Neutronen-Abschirmung verwendet werden.

Der Behälter ist innen mit auswechselbaren Körben ausgerüstet, um sich den verschiedenen geometrischen Formen der Brennelemente anpassen zu können; die Oberfläche trägt etwa 16 000 Kühlstacheln, die den Vorteil haben, daß die Kühlung praktisch unabhängig von der Position des Behälters ist und daß die für die Abstrahlung der im Innern des Behälters entstehenden Wärme nötige Oberflächenvergrößerung besonders günstig ist. Der Behälter kann im Rahmen der Vorschriften Brennstoff mit

einer Wärmeentwicklung zwischen 16 und 20 kW insgesamt aufnehmen.

Für die hoch abgebrannten Brennelemente der kommerziellen Kraftwerke ist eine Weiterentwicklung dieses Behälters vorge-

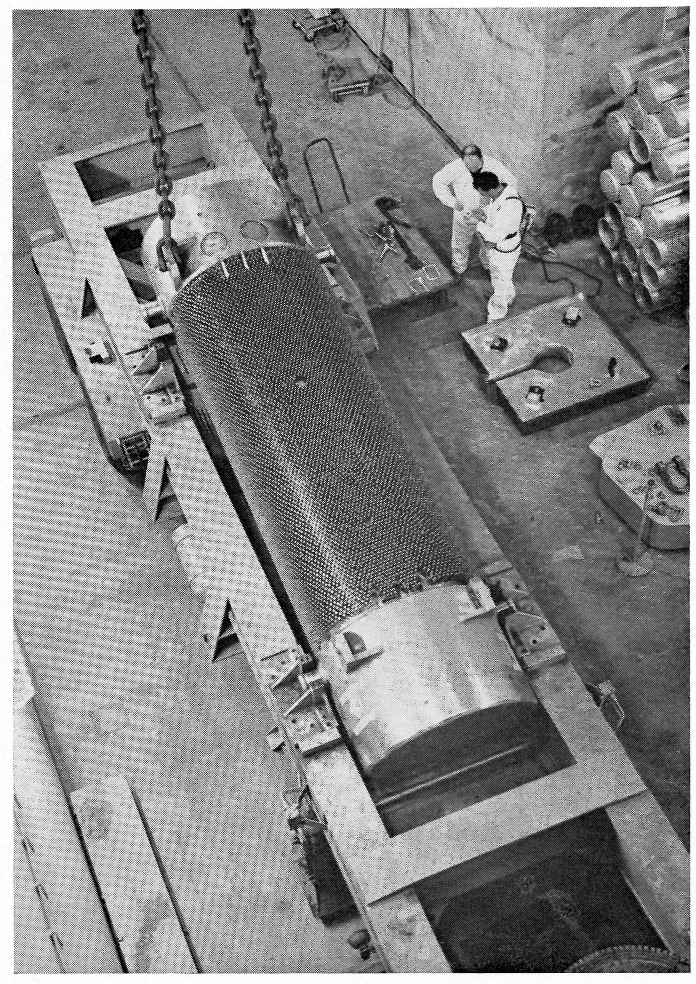


Abb. 46 Transportbehälter für den Transport von bestrahlten LWR-Elementen. Zur Abführung der Nachzerfallswärme trägt der Behälter Kühlstacheln.
Foto: Transnuklear

sehen. Diese Behälter müssen eine Neutronen-Abschirmung enthalten. Die Abfuhr der Wärme muß weiter verbessert werden.

Hohes Transportgewicht

Das Verhältnis des Gewichtes des transportierten Urans zu dem Gewicht des Behälters liegt bei modernen Transportbehältern in Abhängigkeit von Geometrie, Abbrand etc., etwa bei 1:30. Das bedeutet, daß man für jede Tonne bestrahlten Urans ca. 60 t Behältergewicht transportieren muß, da auch die Leertransporte zu berücksichtigen sind.

4.4 Weitere Entwicklung

Größere Behälter

Obwohl es den Anschein hat, daß sehr große Transportbehälter wirtschaftlich keine deutlichen Vorteile bringen, könnten solche Behälter aus anderen Gründen wünschenswert werden, weil die Gesamtzahl der Transporte reduziert und diese der Tageskapazität der Aufarbeitungsanlage angepaßt werden kann (bei modernen Großanlagen 5 t Uran pro Tag), so daß pro Tag nur maximal ein Behälter anzuliefern ist. Die mit dem Transport so großer Uranmengen verbundenen Probleme können noch nicht als endgültig gelöst angesehen werden, entsprechende Entwicklungsarbeiten sind jedoch im Gange.

Transport von Brüterelementen

Ebenso muß zum Problem des Transports von bestrahlten Brennelementen aus Schnellen Brütern noch viel Entwicklungsarbeit geleistet werden. Hier sind es insbesondere der erhöhte Abbrand und die damit verbundene Wärmeabgabe, Kritikalitätsprobleme aufgrund des relativ hohen Spaltstoffgehaltes, erhöhte Neutronenstrahlung aufgrund des Aufbaues größerer Mengen spontan spaltender Transurane sowie Wärmeübergangsprobleme aufgrund der kompakten Bauweise der Brennelemente, die gelöst werden müssen.

5. Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

K. L. Huppert

Die chemische Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe hat die Rückgewinnung von nicht verbrauchtem bzw. erbrütetem Spaltstoff – Uran-235, Uran-233 und Plutonium – zum Ziel. Das wiedergewonnene Material wird zur Herstellung neuer Brennelemente weiterverwendet. Daneben kann die Rückgewinnung von Brutmaterial, d. h. von Uran-238 und Thorium-232, wirtschaftliche Bedeutung erlangen. Ferner besteht wissenschaftliches und in Zukunft vielleicht auch wirtschaftliches Interesse an der Isolierung von Transuran-Elementen und bestimmten radioaktiven Spaltprodukten (z. B. Caesium-137) hinsichtlich der Verwendung als Strahlenquellen. Für die Betreiber von Kernkraftwerken ist die Aufarbeitung des Brennstoffes wirtschaftlich dann sinnvoll, wenn der Wert des wiedergewonnenen Materials abzüglich der Wiederaufarbeitungskosten die Kosten für eine Einlagerung der Brennelemente als radioaktiver Abfall übersteigt. Diese Voraussetzung ist im allgemeinen durch den hohen Wert des gewinnbaren Plutoniums erfüllt.

Wann lohnt sich eine Wiederaufarbeitung?

5.1 Wiederaufarbeitungsverfahren

Die heute in Kernkraftwerken mit Leichtwasser-Reaktoren eingesetzten Brennelemente müssen meist nach einer Standzeit von etwa 3 Jahren ausgewechselt werden. Mit der angegebenen Standzeit wird in modernen Leistungsreaktoren ein Abbrand von 20 000 bis 30 000 $MW_{th}d/t$ Uran erreicht (1 MWd = 24 000 kWh), dem eine spezifische Betaaktivität der Spaltprodukte von 2000 bis 3000 Ci/kg Uran entspricht. Der Plutoniumgehalt solcher Brennstoffe beträgt 8–10 g Pu pro Kilogramm Uran (siehe Tab. 10).

Nach dem Entladen aus dem Reaktorkern läßt man die Brennelemente etwa 150 Tage „abkühlen“, davon ca. 3 Monate im Abklingbecken des Reaktors. Nach 90-100 Tagen werden sie zur Wiederaufarbeitungsanlage transportiert und dort eingelagert, wo die Restkühlung erfolgt. Während der Kühlzeit zerfällt ein großer Teil der kurzlebigen Spaltprodukte. Von besonderer Bedeutung ist es, daß in dieser Zeit die radiotoxischen und schwer fixierbaren

Abklingen am Reaktor

Jodisotope (J-129, J-131) nahezu vollständig abgebaut werden und vorhandenes Uran-237 quantitativ zu Neptunium-237 wird.

Bei der Wiederaufarbeitung werden Uran und Plutonium von den radioaktiven Spaltprodukten und beide voneinander getrennt. Das wiedergewonnene Uran soll weitgehend die (Beta-) Eigenaktivität des Natururans von 0,67 mCi/kg erreichen, damit es ohne Abschirmung verarbeitet werden kann. Aus den genannten Ausgangsdaten erhebt sich die Forderung nach einem Dekontaminationsfaktor DF von etwa 10^7:

Dekontaminationsfaktor

$$DF = \frac{\text{Spezifische Aktivität vor der Verarbeitung}}{\text{Spezifische Aktivität nach der Verarbeitung}}$$

$$= \frac{2500 \text{ Ci/kg U}}{0{,}67 \cdot 10\text{-}3 \text{ Ci/kg U}} = 4 \times 10^6$$

Diese aus der Sicht der konventionellen Chemie extreme Reinheitsforderung hat seit den Anfängen der Kerntechnik zu verschiedenen Aufarbeitungsmethoden geführt (Fällverfahren, Extraktion, Sublimation), die sich heute auf einige technisch vorteilhafte und wirtschaftliche Prozesse reduziert haben. Besondere Bedeutung haben die wäßrigen Verfahren gewonnen.

5.1.1 Aufschluß des Brennstoffs

Bevor der Brennstoff – vorwiegend Uranoxid, zum geringeren Teil Metall, Urankarbid oder Uran-Legierungen – chemisch verarbeitet werden kann, erfolgt ein Aufschluß, worunter man die Entfernung des Hüllenmaterials und das Auflösen des Brennstoffs versteht. Bei der Mehrzahl der Kernkraftwerke besteht die schützende Hülle um den Brennstoff aus dünnwandigen Zircaloy- bzw. Edelstahlrohren, aus einer Magnesiumlegierung (Magnox-Elemente) oder Graphit (HTGR-Elemente). Deren Entfernung ist auf chemischem oder mechanischem Wege möglich.

Chemische Enthülsung

Bei der chemischen Enthülsung wird das metallische Hüllmaterial durch Einwirkung von Chemikalien gelöst, wobei der Brennstoff (UO_2, PuO_2) ungelöst zurückbleibt. So gelingt es, Edelstahl mit verdünnter Schwefelsäure, Zirkonlegierungen mit Hilfe von Ammoniumfluorid/Ammoniumnitrat-Lösungen bei Siedetemperatur zu entfernen. Die aus Aluminium und hochangereichertem Uran bestehenden Plattenbündel der MTR-Elemente löst man insgesamt in Salpetersäure auf (unter Zusatz katalytisch wirkender Quecksilbersalze).

Obwohl es auf diese Weise möglich ist, Brennelemente beliebiger Formgebung zu verarbeiten, haftet der Methode der Nachteil an, daß größere Mengen salzhaltiger, radioaktiver Flüssigkeiten anfallen, die auf kostspielige Weise beseitigt werden müssen. Ferner müssen die Lösekessel selbst aus korrosionsbeständigem und daher teuerem Material gefertigt sein. Man zieht deshalb die mechanischen Aufschlußverfahren vor.

Die mechanische Entfernung des Hüllmaterials wird in großem Maßstab bei den Magnox-Elementen der CO_2-Graphit-Reaktoren vorgenommen. Dabei werden die aus einer Magnesiumlegierung bestehenden Hüllrohre eingekerbt und maschinell abgeschält. Die verbleibenden Uranmetall-Stäbe gehen danach zur Auflösung. Das Verfahren ist für die Brennelemente mit oxidischen Brennstoffen in dünnen Hüllrohren nicht anwendbar. Für diese hat sich ein Verfahren bewährt, das unter der Bezeichnung „chop-leach-Prozeß" bekannt geworden ist. Einzelne Brennstäbe oder ganze Bündelelemente werden dabei in einer gekapselten Schermaschine zu kurzen Hackstücken zerschnitten und gelangen in dieser Form in den Lösekessel. In der zum Lösen zugesetzten Salpetersäure löst sich der Brennstoff in der Siedehitze auf, während die Hüllenabschnitte aus Zircaloy oder Edelstahl ungelöst zurückbleiben.

Mechanische Enthülsung

„chop-leach"

Der Vorteil der mechanischen Verfahren besteht darin, daß metallische Strukturteile und der Hülsen-Schrott als Festabfall mit relativ geringem Volumen anfallen und in dieser Form zeitlich unbegrenzt gelagert werden können. Dieser Aspekt hat dem zuletzt genannten Verfahren bei einer Reihe moderner Wiederaufarbeitungsanlagen zum Durchbruch verholfen.

Einer besonderen Vorbehandlung bedürfen die Brennelemente gasgekühlter Hochtemperatur-Reaktoren, z. B. eines Kugelhaufenreaktors. Der Aufschluß gelingt durch oxidative Entfernung (Abbrennen) der Graphithülle. Dazu müssen die Kugeln in einem vorausgehenden Arbeitsgang zerkleinert oder gemahlen werden. Der verbleibende oxidische Rückstand gelangt ebenfalls zur Auflösung in Salpetersäure.

Für die wässrigen Verfahren muß der Brennstoff nach der Entfernung des Hüllmaterials in Lösung gebracht werden. Es wird praktisch ausschließlich Salpetersäure bei Siedetemperatur verwendet, da die entstehenden Lösungen von Uranylnitrat, Plutoniumnitrat und Nitraten der Spaltprodukte optimale Bedingungen für die nachfolgende Lösungsmittelextraktion liefern. Bei höherem Pu- bzw. Thorium-Gehalt, z. B. bei Brennstoffen von Brutreaktoren, kann ein Zusatz von Flußsäure zur Lösesäure notwendig sein. Die Brennstofflösung wird nach Abschluß des mehrstündigen Lösevorgangs filtriert und auf Extraktionskonzentrationen eingestellt.

5.1.2 Reinigungsverfahren

Die eigentlichen Reinigungs- bzw. Dekontaminationsprozesse haben verschiedentlich einen Wandel erfahren. Die Fällungsverfahren der Frühperiode kommen nicht mehr zur Anwendung. Größte technische Bedeutung hat dagegen die Lösungsmittelextraktion erlangt, wogegen andere Prozesse, wie die Fluoridverflüchtigung und die pyrometallurgischen Verfahren, nur vereinzelt angewendet werden oder sich noch in der Entwicklung befinden.

Extraktion Das Verfahren der Lösungsmittelextraktion beruht darauf, daß sich Uranylnitrat und Plutoniumnitrat (ebenso Thoriumnitrat) mit bestimmten organischen Lösungsmitteln aus einer wässrigen Lösung extrahieren lassen. Die gleichzeitig anwesenden Nitrate der Spaltprodukte sind in dem organischen Medium um Größenordnungen weniger löslich und bleiben in der wässrigen Phase zurück.

Zweckmäßigerweise wird die Trennung in Form einer kontinuierlichen Gegenstromextraktion ausgeführt. Die wäßrige Brennstofflösung (Speiselösung) und das nicht mit dieser mischbare organische Lösungsmittel werden in innigen Kontakt gebracht und im Gegenstrom zueinander geführt. Als organisches Lösungsmittel kommen Ketone, Äther, Amine mit langkettigen Substituenten, Ester und ähnliche Verbindungen in Frage, von denen sich insbesondere das Tri-n-butylphosphat, $(C_4H_9)_3PO_4$ (= TBP) in großtechnischem Maßstab bewährt hat.

Gewöhnlich wird das TBP mit aliphatischen Kohlenwasserstoffen (z. B. Petroleum) auf 20-30 % verdünnt. Seinem Lösevermögen liegt die Komplexbildung mit Schwermetallnitraten zugrunde, wobei komplexe Verbindungen des Typus $UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP$ gebildet werden. Die Komplexbildung wird durch Aussalzmittel (Salpetersäure, Nitrate), die die chemische Aktivität des Wassers verringern, begünstigt. Dementsprechend ist es umgekehrt möglich, in einem nachfolgenden Schritt Uran und Plutonium aus der produktbeladenen organischen Phase mit Wasser zurückzuextrahieren.

PUREX-Prozeß Normalerweise kommt der TBP-Prozeß in einer speziellen Variante, dem PUREX-Verfahren, zur Anwendung. Bei diesem erfolgt nach der Erstextraktion und einer Wäsche des Produktstroms mit verdünnter Säure die chemische Abtrennung des Plutoniums vom Uran. Von Bedeutung ist dabei das unterschiedliche Verhalten des chemisch vier- bzw. dreiwertigen Plutoniums: Während Plutonium-4-nitrat im organischen Medium gut löslich ist, ist Plutonium-3-nitrat praktisch nicht extrahierbar. Man geht so vor, daß man durch Zugabe eines Reduktionsmittels (Eisen-2-sulfaminat, Uran-4-nitrat) das in der organischen Phase enthaltene Plutonium reduziert, das daraufhin in den wäßrigen Waschstrom zurückkehrt. Das in der organischen Phase verbleibende Uran geht zur Rückextraktion in einen nachgeschalteten Extraktor.

Das Plutonium verläßt mit dem Waschstrom den ersten Extraktionszyklus, in dem die Spaltproduktaktivität auf etwa ein Tausendstel herabgedrückt werden konnte. Es durchläuft dann – nach Aufoxidation zur 4-wertigen Stufe – einen weiteren Zyklus (2.Plutoniumzyklus), wo es durch erneute Extraktion und Rückextraktion weiter dekontaminiert wird.

Im allgemeinen schließt sich an die Lösungsmittelextraktion als letzte Stufe eine Endreinigung und Konzentrierung des Plutoniums durch Anionen-Austausch an. Aus stark saurer Lösung

wird der Komplex $[Pu (NO_3)_6]^{2-}$ an einem Ionenaustauscherharz adsorbiert und in konzentrierter Form eluiert. Als Produkt erhält man eine Plutoniumnitratlösung mit ca. 50g/l Plutonium, die zu Plutoniumdioxid, PuO_2, weiterverarbeitet wird.

Das Uran wird in ähnlicher Weise nach der Abtrennung des Plutoniums einem zweiten, erforderlichenfalls auch einem dritten Extraktionszyklus unterworfen. Zusätzlich wird vielfach noch eine Endreinigung vorgesehen. Die weitgehend gereinigte Uranylnitratlösung wird dazu über eine Kolonne mit feinkörnigem, oberflächenaktivem Siliciumdioxid geleitet, an dem besonders hartnäckige Spaltprodukt-Ionen (Zr, Nb) zurückgehalten werden. Zweckmäßigerweise wird die Uranlösung zwischen den einzelnen Zyklen in Verdampfern aufkonzentriert. Das schließlich erzielte Endprodukt ist eine Uranylnitratlösung mit etwa 450 g/l Uran, die je nach U-235-Anreicherungsgrad zur Herstellung neuer Brennelemente weiterverwendet oder für die Isotopen-Anreicherung zu UF_6 konvertiert wird.

THOREX-Prozeß

Für Brennstoffe, die neben angereichertem Uran Thorium als Brutstoff enthalten, kommt ebenfalls ein TBP-Prozeß, das THOREX-Verfahren, zur Anwendung. Eine vorausgegangene Abklingzeit von wenigstens 200 Tagen ist angezeigt, damit sich das aus Th-232 gebildete Protaktinium-233 (Halbwertszeit 27 Tage) weitgehend in das als Spaltmaterial begehrte U-233 umwandeln kann. Gleichzeitig anwesendes Uran-232 (aus Th-232 durch n/2n-Reaktion; Halbwertzeit 74 Jahre) wirft Kontaminationsprobleme auf, da dessen Zerfallsprodukt, Th-228 und seine Töchter, eine erhebliche Radioaktivität im zurückgewonnenen Uran erzeugen.

Beim Thorex-Prozeß werden zunächst Uran und Thorium aus einer Lösung, der man Aluminiumnitrat als Aussalzmittel zugesetzt hat, gemeinsam extrahiert, während die Spaltprodukte im wäßrigen Strom zurückbleiben. Für die Trennung U/Th kann man nicht wie beim Purex-Verfahren von einem Wechsel der Oxidationsstufe Gebrauch machen. Vielmehr wird das Thorium selektiv mit etwa 1,5 molarer Salpetersäure ausgewaschen und anschließend auch das Uran mit Wasser zurückextrahiert. Die Uranlösung unterliegt danach einer weiteren Feinreinigung in der weiter oben beschriebenen Weise. Auf eine Rückgewinnung des Thoriums verzichtet man im allgemeinen wegen seines geringen Wertes.

Gewinnung von Spaltprodukten und Transuranen

Aus den wäßrigen Abfällen der Lösungsmittelextraktion können bestimmte Spaltprodukte oder Transurane isoliert werden, für die sich technische Anwendungsmöglichkeiten ergeben. Ein Bedarf besteht z. B. für Neptunium-237, das durch Neutronenbestrahlung in das als Energiequelle verwendete Pu-238 überführt werden kann. Np-237 entsteht durch Neutroneneinfang aus U-235 und U-238 und anschließendem β-Zerfall; im Brennstoff ist es in einer Konzentration von 100–400 g pro Tonne vorhanden. Die Abtrennung des Np-237 aus den wäßrigen Abfall-Lösungen (Raffinaten) erfolgt vorzugsweise durch Adsorption des Nitrato-

komplexes $[Np(NO_3)_6]^{2-}$ an Anionenaustauscherharzen und nachfolgende Reinigung, ebenfalls durch Ionenaustausch.

Interesse besteht auch für die als Energiequellen hoher Dichte verwertbaren Curiumisotope 242 und 244 sowie bestimmte, als Strahlenquellen benutzbare Spaltprodukte (Cs-137, Sr-90 u. a.). Deren Abtrennung aus den Abfällen ist ebenfalls auf chemischem Wege möglich.

Apparatives

Verfahrenstechnisch wird die Gegenstromextraktion in geeigneten Extraktoren ausgeführt, wobei sich Füllkörperkolonnen, Pulskolonnen oder Mischabsetzerbatterien eingeführt haben. Die in der konventionellen Chemie bisher nur für Sonderzwecke verwendeten Mischabsetzerbatterien bestehen aus einzelnen, untereinander gleichen Kammern, die abwechselnd so zueinander angeordnet sind, daß die Überläufe des Absetzteils einer Kammer in die Mischteile der benachbarten Kammer führen. Durch Pump-Misch-Rührer werden die organische und wäßrige Phase über die gesamte Batterie im Gegenstrom, in den einzelnen Kammern hingegen im Gleichstrom geführt. Die Weiterentwicklung der Mischabsetzer hat zu den Zentrifugalextraktoren geführt, in denen die Trennung der gemischten Phasen in einer Zentrifuge erfolgt. Auf diese Weise ist es möglich, die Verweilzeiten und damit die Aufenthaltsdauer des zersetzlichen Lösungsmittels im Strahlenfeld klein zu halten.

Fluoridverflüchtigung

Gewisse Nachteile der Lösungsmittelextraktion, wie Anfall größerer Mengen flüssiger, radioaktiver Lösungen, versucht man bei dem noch in der Entwicklung befindlichen Verfahren der Fluoridverflüchtigung zu vermeiden. Sein Vorteil besteht außerdem darin, daß das als Endprodukt anfallende Uranhexafluorid UF_6 unmittelbar der Isotopenanreicherung zugeführt werden kann.

Grundlage der Methode ist die leichte Sublimierbarkeit von UF_6 und PuF_6 im Gegensatz zur Nichtflüchtigkeit der meisten Spaltproduktfluoride. Die Umsetzung des oxidischen Brennstoffes mit Fluor führt zu UF_6 und PuF_6. Eine stufenweise Fluorierung mit BrF_3, BrF_5 bzw. ClF_3 ist ebenfalls möglich, wobei zunächst nichtflüchtiges PuF_4 entsteht, das in einer weiteren Stufe mit Fluor zu Plutoniumhexafluorid umgesetzt wird. Die nachfolgende fraktionierte Destillation der Fluoride ergibt sehr hohe Dekontaminationsfaktoren.

Technologische Probleme stehen bisher einer breiten Anwendung des Verfahrens entgegen. Insbesondere bereitet die Korrosivität des Systems und ganz allgemein die Instabilität des Plutoniumhexafluorids (Plutoniumabscheidung infolge thermischer Zersetzung) Schwierigkeiten.

Pyrometallurgische Verfahren

Die einzige bisher routinemäßig betriebene Brennstoffaufarbeitung nach einem Hochtemperaturverfahren besteht im Schmelzen von metallischem Brennstoff, wobei ein Teil der Spaltprodukte gasförmig entweicht und ein weiterer Teil verschlackt wird. Uran und Plutonium werden nicht getrennt; der Dekontaminationsfaktor

beträgt etwa 10. Dieses für den amerikanischen Brutreaktor EBR-II entwickelte Verfahren erforderte jedoch eine kostspielige fernbediente Refabrikation der Brennelemente und wurde wegen der damit verbundenen Schwierigkeiten aufgegeben.

Im Forschungsstadium befinden sich auch noch die Verfahren zur Extraktion mit Metall- oder Salzschmelzen bei Temperaturen von 600-800°C. Als Beispiel sei ein vom Argonne National Laboratory entwickeltes Verfahren erwähnt, bei dem Plutonium aus einer Cu-Mg-Schmelze mit einer Mg-Na-K-Chloridschmelze extrahiert und gleichzeitig in eine Zn-Mg-Legierung zurückextrahiert wird. Uran bleibt in der Cu-Mg-Schmelze zurück, während die Spaltprodukte überwiegend in die Salzschmelze gehen.

Man sieht den Vorteil der pyrometallurgischen Verfahren darin, daß die radioaktiven Rückstände mit kleinem Volumen und in fester Form anfallen. Die erzielbaren Dekontaminationsfaktoren von 100–1000 bei einem Durchgang eröffnen auch diesen Verfahren gewisse Zukunftschancen.

5.2 Technologische Besonderheiten bei der Wiederaufarbeitung

Aus der Anwesenheit spaltbaren Materials (Uran, Plutonium) und radioaktiver Stoffe ergibt sich eine Reihe technologischer Besonderheiten für die Auslegung und apparative Ausrüstung einer Wiederaufarbeitungsanlage:

Abschirmung

Alle Operationen mit bestrahlten Brennstoffen müssen hinter Abschirmwänden ausgeführt werden, die sowohl das Bedienungspersonal als auch empfindliche apparative Einrichtungen vor der Strahlung schützen. Zu diesem Zweck werden die einzelnen Anlageteile in Zellen eingebaut, deren Betonwände mit einer Dicke bis zu 1,80 m die Strahlung auf zulässige Toleranzwerte abschirmen.

Fernbedienung

Die dadurch bedingte Unzugänglichkeit der Einrichtungen erfordert, daß die Apparate robust und weitgehend wartungsfrei ausgelegt sind. Aus diesem Grund ersetzt man z. B. die störanfälligen mechanischen Pumpen durch Airlifts und Dampfstrahler. Ferner muß ein einfacher und schneller Ersatz von Apparateteilen gewährleistet sein. Unter Umständen ist für Maschinen und Apparate, die starkem Verschleiß unterliegen (z. B. bei der mechanischen Enthülsung) eine fernbedienbare Wartungseinrichtung mit Manipulatoren vorzusehen.

Wegen der Anwesenheit spaltbaren Materials besteht die Möglichkeit einer unkontrollierten Kettenreaktion, die durch Maßnahmen zur Kritikalitätskontrolle ausgeschlossen werden muß. Sofern diese nicht durch Konzentrations- oder Massenbeschränkungen erreicht werden, müssen die Behälter und Apparate in kritisch sicherer Geometrie (Scheiben- oder Röhrenform) ausgeführt oder mit neutronenabsorbierenden Einbauten versehen werden.

Schließlich ist wegen der kostspieligen Verarbeitung und Endlagerung radioaktiver Abfälle eine besondere Ökonomie des Ver-

fahrensablaufs erforderlich. Deshalb werden die in größerer Menge anfallenden Spaltproduktlösungen auf kleine Volumina eingeengt; die überschüssige Säure wird in einer besonderen Verfahrenseinheit durch Destillierung dekontaminiert. Die aufkonzentrierte Säure kommt wieder zum Einsatz. Ebenso wird das organische Lösungsmittel nach Durchlaufen der Extraktionszyklen zurückgewonnen und im Kreislauf geführt.

Immer sind auch besondere Maßnahmen zum Schutz der Umgebung vorzusehen: die Abluft aus dem Behälterventilationssystem muß vor der Abgabe über den Kamin in Waschtürmen gereinigt und in Feinstfiltern von Aerosolen befreit werden. In ähnlicher Weise verfährt man mit der Raum- und Zellenabluft.

5.3 Übersicht über bestehende Anlagen

Betrachtet man einige der bekannten Wiederaufarbeitungsanlagen, wie sie in der Tabelle 9 zusammengestellt sind (über die Anlagen der Ostblockländer liegen nur wenige Informationen vor), so stellt man fest, daß praktisch ausschließlich Verfahren der Lösungsmittelextraktion zur Rückgewinnung des Spaltmaterials angewendet werden.

Tab. 9: Wiederaufarbeitungsanlagen in der westlichen Welt

Anlage	Standort		Durchsatz jato	Aufschluß	Chemisches Verfahren
HAPO	Hanford	USA	–	–	REDOX u. PUREX
Savannah River	Aiken	USA	–	chem.-elektrolyt.	PUREX
ICPP	Idaho	USA	–	–	PUREX
EBR-II-FCF	Idaho	USA			Schmelzreinigung
NFS	West Valley	USA	300	chop-leach	PUREX
MFRP *	Morris	USA	300	chop-leach	Aquafluor
Barnwell *	Barnwell	USA	1500	chop-leach	PUREX
Windscale	Windscale	GB	1500	mech. u. chop-leach	BUTEX u. PUREX
Dounreay	Dounreay	GB	–		PUREX
Marcoule	Marcoule	F	–	chem.	PUREX
Cap de la Hague	La Hague	F	600	chem.	PUREX
Eurochemic	Mol	B	80	chem.	PUREX
Kjeller	Kjeller	N	3	chem.	PUREX
EUREX I	Saluggia	I	10	chem. u. chop-leach	PUREX
ITREC	Rotondella	I			THOREX
WAK	Karlsruhe	D	40	chop-leach	PUREX
JEN	Madrid	E	2/10	chem.	PUREX
Trombay	Trombay	IND	80	chem.	PUREX
Tokai Mura *		JAP	200	chop-leach	PUREX

* Anlage in Planung oder im Bau

Eine Ausnahme bildet das Aquafluor-Verfahren der in Planung befindlichen „Midwest Fuel Recovery Plant, MFRP", das aus einer Kombination von TBP-Prozeß und Fluoridverflüchtigung besteht. Der Aufschluß erfolgt durch chemische Enthülsung oder – bei einigen modernen Anlagen – nach dem mechanischen Verfahren.



Abb. 47 Blick auf Windscale in Cumberland, England. Im Vordergrund die See, rechts die vier Calder-Hall-Reaktoren, links der FGR-Reaktor mit seinem kugelförmigen Gehäuse. Die Wiederaufarbeitungsanlage nimmt die Gebäudegruppe vor dem linken der beiden Schornsteine ein, die zu den beiden, jetzt stillgelegten Windscale-Forschungsreaktoren gehören.
Foto: UKAEA

Windscale Abb. 47 zeigt die britische Anlage in Windscale, die mit einem Jahresdurchsatz von ca. 2000 t Natururan die größte in Betrieb befindliche Anlage ist. Von einer Reihe weiterer Anlagen werden die Durchsatzziffern nicht genannt, da sie der Waffenproduktion dienen.

WAK In der Bundesrepublik Deutschland hat man Anfang der 60er

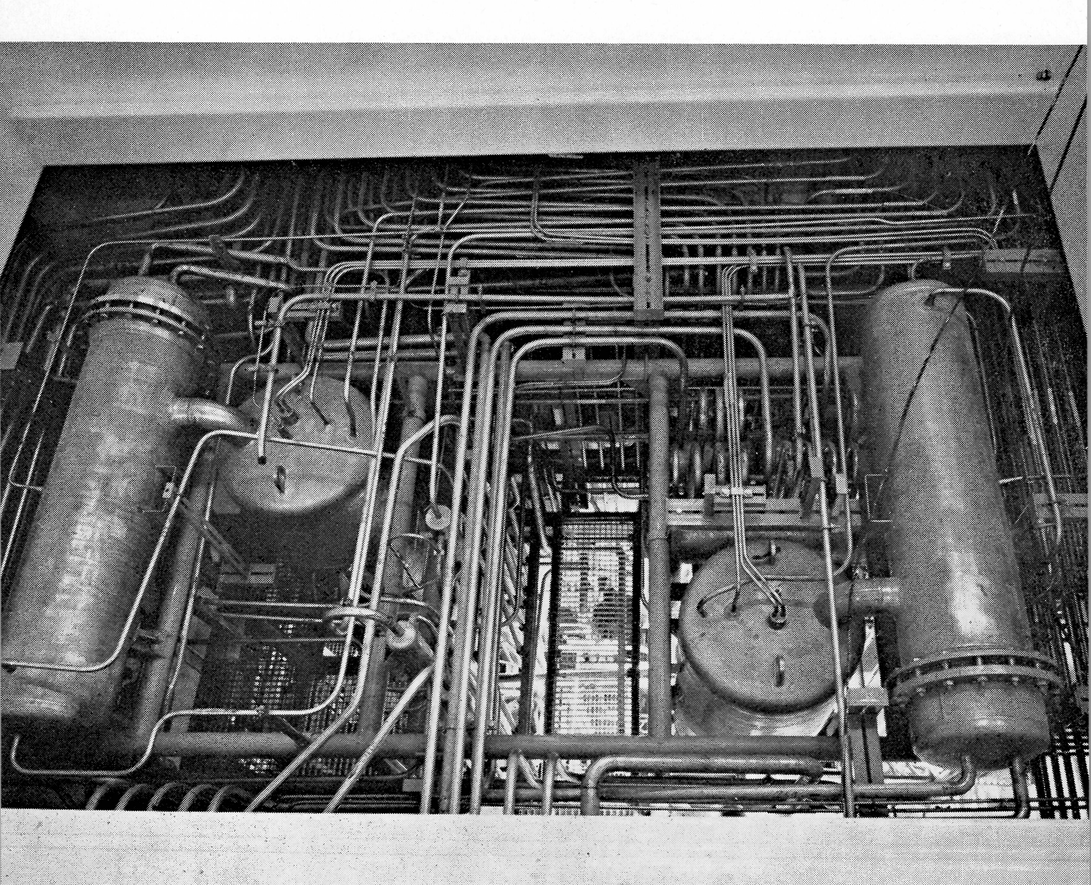


Abb. 48 Blick in eine der 10 Prozeßzellen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK). Die dicke Abschirmung ist am Rande sichtbar. In der dargestellten Zelle wird die nach dem 1. Extraktionszyklus angefallene Spaltproduktlösung konzentriert und die abgedampfte Salpetersäure kondensiert. Es sind zwei hintereinandergeschaltete Verdampfer (vertikal) und Kondensatoren (horizontal) sichtbar.
Foto: GWK

Jahre konkrete Pläne für den Bau einer Wiederaufarbeitungsanlage aufgenommen, nachdem im Jahre 1961 das erste deutsche Kernkraftwerk VAK seinen Betrieb aufgenommen hatte. Mit dem Bau dieser Anlage – der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, WAK – wurde Anfang 1967 und mit dem Versuchsbetrieb Ende 1969 begonnen.

Abb. 48 zeigt einen Blick in eine der Prozeßzellen der Anlage. Bezüglich des Verfahrens hat man sich bei der Planung an bewährte ausländische Vorbilder angelehnt. Der Brennstoffaufschluß erfolgt nach dem chop-leach-Verfahren, während als chemisches Verfahren der PUREX-Prozeß gewählt wurde. Die Anlage kann mit einem Jahresdurchsatz von 40 t Uranoxid den Ausstoß von mehreren Kernkraftwerken, deren Leistung zusammen etwa 1000 MWe beträgt, verarbeiten.

Besondere Versuchseinheiten sind zur Abtrennung von Neptunium-237 und zur Erprobung von Zentrifugalextraktoren, wie sie für die Verarbeitung von Brüterelementen mit hohem Abbrand gebraucht werden, vorgesehen.

6. Behandlung und Endlagerung radioaktiver Abfälle [8])

K. L. Huppert

Verfestigung der Abfälle

Die Endlagerung der Abfälle, die bei der Wiederaufarbeitung anfallen, soll möglichst kostensparend sein und den Schutz der Umwelt vor Kontamination in ausreichendem Maße gewährleisten. Aus diesen Gründen werden Festabfälle sowie die festen Eindampfrückstände schwachaktiver Flüssigkeiten in Bitumen oder Beton eingeführt und in dieser Form in Fässern gelagert.

Die hochaktiven, konzentrierten Spaltproduktlösungen erfordern eine gesonderte Behandlung. Diese Lösungen, mit spezifischen Aktivitäten von einigen Tausend Curie pro Liter, sind selbsterhitzend und durch ihren Gehalt an Säure und Metallionen korrosiv. Im allgemeinen werden diese Abfälle einige Jahre unter Kühlung in Edelstahltanks gelagert, damit ein Teil der Radioaktivität abklingen kann. Danach wird eine Verfestigung angestrebt, die eine Volumenverringerung mit sich bringt und die Gefährdung durch Leckagen ausschließt. Sowohl in der Bundesrepublik Deutschland als auch in anderen Ländern sind Bemühungen im Gange, die verbleibenden Rückstände in Glas zu überführen. Es ist geplant, die Glasbarren ab Mitte der Siebziger Jahre in einem aufgelassenen Salzbergwerk einzulagern, das vor zirkulierenden Tiefenwässern geschützt ist. Auf deutschem Boden finden vorbereitende Versuche in dem ehemaligen Bergwerk Asse II bei Wolfenbüttel statt. Eine sichere Endlagerung der Abfallstoffe der Kernenergieerzeugung wird auf diese Weise gewährleistet.

---

[8]) Siehe hierzu das Heft 16 der Schriftenreihe des Deutschen Atomforums „Endlagerung radioaktiver Rückstände“ von E. Albrecht et al.

7. Wiedereinsatz von aufgearbeitetem Brennstoff

H. Keese

Nach dem Einsatz im Reaktor enthält das bestrahlte Uran neben den Spaltprodukten noch Plutonium und andere Aktiniden. Tab. 10 zeigt die Zusammensetzung von bestrahltem Kernbrennstoff aus einem Siedewasser- und einem Druckwasserreaktor. Die Angaben gelten für einen 1000 MWe-Reaktor.

Bei der Wiederaufarbeitung der abgebrannten Brennelemente werden das Uran und das Plutonium in gereinigter Form zurückgewonnen, während die Spaltprodukte und die Aktiniden gewöhnlich in den Abfallösungen verbleiben. Bei geeigneter Prozeßführung bzw. Nachbehandlung der Abfallösungen ist eine Abtrennung der Spaltprodukte sowie einzelner Aktinidenelemente, insbesondere Neptunium-237 und Americium-241 möglich.

Tab. 10: Zusammensetzung von bestrahltem Kernbrennstoff aus Leichtwasser-Reaktoren *)
(alle Angaben auf 1 kg eingesetzes Uran bezogen)

	Reaktortyp	
	SWR	DWR
Ausgangsdaten:		
eingesetztes U-235	25,6 g	33,0 g
Abbrand	25,5 MWd	33,0 MWd
Zusammensetzung des bestrahlten Brennstoffs:		
U-235	6,2 g	8,4 g
U-236	3,3 g	4,2 g
U-238	953,0 g	945,0 g
Pu-239	4,6 g	5,3 g
Pu-240	2,1 g	2,4 g
Pu-241	0,9 g	1,2 g
Pu-242	0,4 g	0,4 g
Spaltprodukte Aktiniden (Np, Am, Cm)	ca. 28,0 g	ca. 32,5 g

*) Angaben für einen Gleichgewichtskern

7.1 Uran

Wie aus Tab. 10 ersichtlich, werden beim Einsatz des Urans in einem Leichtwasserreaktor unter den angegebenen Bedingungen etwa 4-5 % der eingesetzten Uranmengen und über 70 % des enthaltenen U-235 abgebrannt. Nach der Wiederaufarbeitung, bei der weitere 1-2 % des Urans verlorengehen, fallen daher ca. 94 % des in den Reaktor eingesetzten Urans mit einer Restanreicherung an, die zwischen 0,6 und 0,9 % U-235 liegt. Das Uran als Endprodukt der Wiederaufarbeitungsanlage wird gewöhnlich in Form von Uranylnitratlösung mit einer Konzentration von 200-400 g U/l (je nach Restanreicherung) und einer freien Salpetersäurekonzentration von weniger als 1 Mol/l abgegeben. Es gibt jedoch Bestrebungen, das Uran bei der Wiederaufarbeitung bereits zu Urantetrafluorid (UF_4) oder -Hexafluorid (UF_6) umzuwandeln, da es zur Wiederanreicherung als UF_6 eingesetzt werden muß.

Geht man davon aus, daß die Abkühlung der bestrahlten Brennelemente, der Transport und anschließend die Wiederaufarbeitung insgesamt etwa 1 Jahr beanspruchen, so steht das wiedergewonnene Uran um diesen Zeitraum nach der Entladung der bestrahlten Elemente aus dem Reaktor zur Verfügung. Abb. 49 zeigt den jährlichen Anfall an aufgearbeitetem Uran aus oxidischen Brennstoffen in der westlichen Welt bis zum Jahre 1980. In Abb. 50 wurden dieselben Angaben in größerem Maßstab nochmals für die Bundesrepublik und für Westeuropa (unter Berücksichtigung metallischer Brennelemente) zusammengestellt.

Anfall entladener Elemente bis 1980

Im Jahre 1980 entspricht die verfügbare Menge an aufgearbeitetem Uran etwa 10 % des Bedarfs an Natururan in der gesamten westlichen Welt (siehe Abb. 3). Es ist daher von großem wirtschaftlichem Interesse, dieses Uran wieder in den Brennstoff-

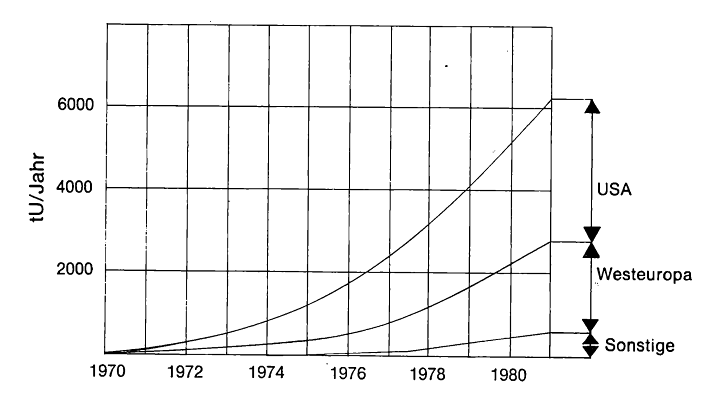


Abb. 49 Anfall an bestrahlten (oxidischen) Kernbrennstoffen in der westlichen Welt.

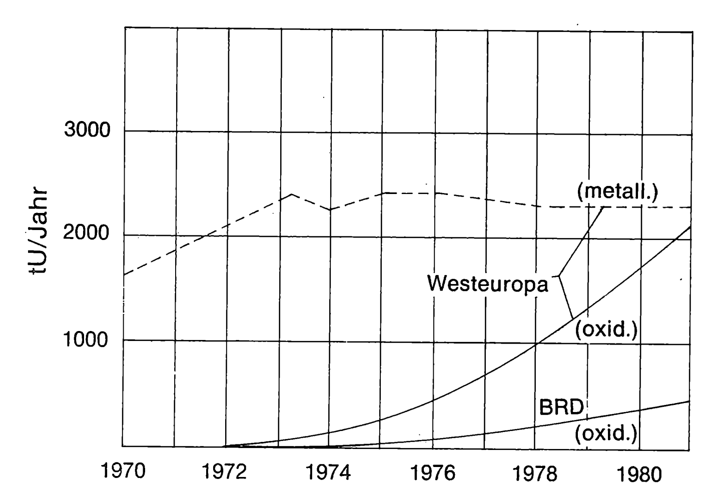


Abb. 50 Anfall an bestrahlten Kernbrennstoffen in Westeuropa.

kreislauf zurückzuführen. Am wirtschaftlichsten wäre zweifellos die direkte Wiederverwendung in einem anderen Reaktor, der mit Uran betrieben werden kann, dessen Anreicherungsgrad der Restanreicherung des wiederaufgearbeiteten Materials entspricht. Dieser Sonderfall wird jedoch praktisch nicht eintreten, da er voraussetzen würde, daß die verschiedenen Reaktorprogramme entsprechend aufeinander abgestimmt werden.

Wieder-anreicherung

Man wird also davon ausgehen müssen, daß das Uran in einen Reaktor zurückgeführt wird, der mit angereichertem Uran betrieben werden muß. Hierzu ist entweder eine Konversion zu UF_6 mit anschließender Wiederanreicherung oder ein Mischen mit höher angereichertem Uran bzw. mit Plutonium erforderlich. Welche der Alternativen schließlich günstiger ist, kann im Einzelfall nur aufgrund detallierter Kostenberechnungen entschieden werden. Man kann jedoch davon ausgehen, daß die Konversion des Uranylnitrats zu UF_6 mit anschließender Wiederanreicherung bis hinab zu Restanreicherungen von etwa 0,5–0,6 % U-235 die wirtschaftlichste Lösung darstellt. Voraussetzung für diese Überlegung ist jedoch, daß sich die heute bekannten Randbedingungen (Uranpreis, Kosten für Trennarbeit, Konversion, Transporte usw.) nicht wesentlich ändern.

Umwandlung in UF_6 für die Wieder-anreicherung

Die Konversion, d. h. die Herstellung von UF_6 aus Uranylnitrat (UNH) kann nach verschiedenen Verfahren erfolgen. Beim sogenannten „nassen Verfahren“ werden die bereits in Abschnitt 1.4 genannten Verfahrensschritte angewandt:

– Denitrierung des UNH zu UO_3
– Reduktion des UO_3 zu UO_2

– Hydrofluorierung des UO_2 zu UF_4
– Fluorierung des UF_4 zu UF_6.

Beim sogenannten „Aquafluorprozeß“ der General Electric werden diese Schritte, beginnend mit der Denitrierung von unreinem UNH, bereits so in den Prozeßablauf der Wiederaufarbeitung eingebaut, daß destillativ gereinigtes UF_6 als Endprodukt anfällt, das dann direkt zur Wiederanreicherung eingesetzt werden kann.

Eine andere Alternative ist die naß-chemische Herstellung von UF_4 nach elektrolytischer Reduktion des Urans in der salpetersauren Uranylnitratlösung. Das UF_4, eine feste Substanz, kann verhältnismäßig leicht zur Konversionsanlage transportiert werden, wo es dann zu UF_6 umgewandelt wird. Dieses Verfahren wurde von der EUROCHEMIC und der Ugine Kuhlmann entwickelt und soll von der „Société de Fluoration d'Uranium“ (SFU) bei der EUROCHEMIC zur Konversion des Uranylendproduktes zu UF_4 angewandt werden. In den bestehenden Anlagen zur Konversion von U_3O_8 zu UF_6 kann das UNH, dessen Restanreicherung meistens über der des Natururans liegt, aus Kritikalitätsgründen sowie wegen der erhöhten Strahlen- und Kontaminationsgefahr nicht verarbeitet werden. Die Kapazität der Konversionsanlagen ist z. Z. noch bescheiden. Mit ihrem Ausbau kann jedoch zusammen mit der Erweiterung der Wiederaufarbeitungsanlagen gerechnet werden.

7.2. Plutonium

Grundsätzlich liegt das Plutonium, im Gegensatz zum Uran, das stets genau durch seine Anreicherung gekennzeichnet werden kann, immer als Gemisch verschiedener Isotope vor, dessen Zusammensetzung sich nach den örtlich und zeitlich verschiedenen Neutronenspektren richtet. Mit zunehmendem Abbrand steigt der Gehalt höherer Isotope an (siehe Abb. 42).

Tab. 11: Erzeugung von Plutonium

Reaktortyp	jährliche Produktion (kg/MWe)		Zeitspanne bis Pu erstmals verfügbar (Jahre)
	Pu gesamt	Pu spaltb.	
Gas-Graphit	0,58	0,43	3
FGR	0,22	0,13	4,3
Leichtwasser	0,26	0,20	3,4
Schwerwasser	0,51	0,25	2

Plutoniumerzeugung im Reaktor

Die Plutoniumerzeugung hängt vom verwendeten Reaktortyp und dem jeweils erzielten mittleren Abbrand ab. Wie aus Tab. 11 hervorgeht, ergeben sich dadurch beträchtliche Unterschiede in der Menge und Zusammensetzung des erzeugten Plutoniums.

Entsprechend dem Zuwachs der nuklearen Kernkraftwerksleistung wird die Plutoniumerzeugung stark zunehmen. Die Abb. 51 gibt die geschätzte kumulierte Plutoniumerzeugung (zum Zeitpunkt der Verfügbarkeit des Plutoniums) in der westlichen Welt bis zum Jahre 1980 an.

Man kann heute mit einiger Bestimmtheit voraussagen, daß die Plutoniummenge, die im Jahre 1980 (nicht wie weiter unten

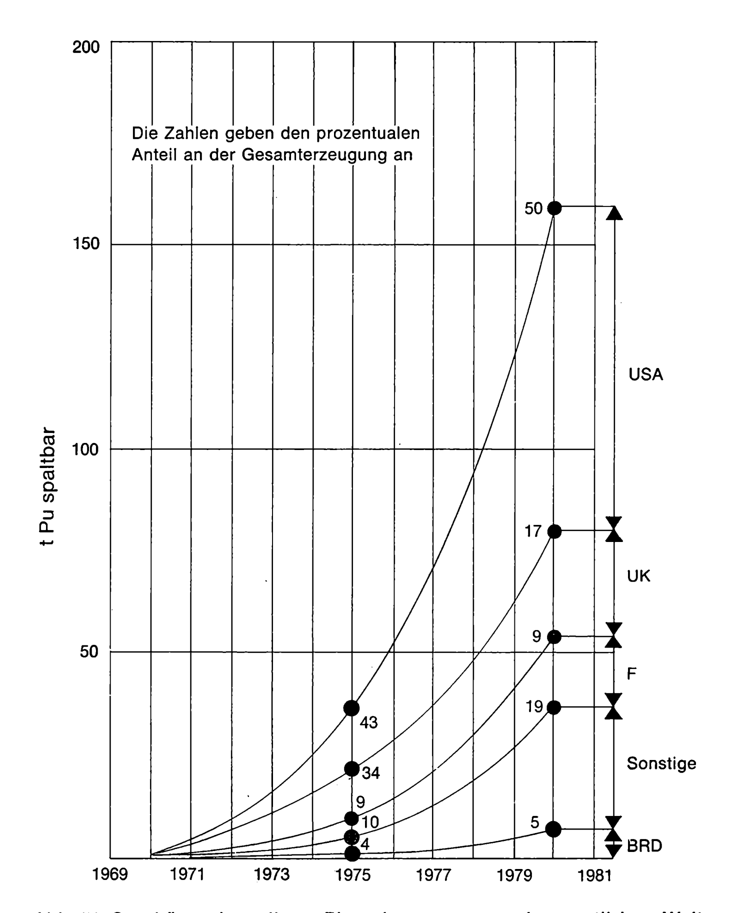


Abb. 51 Geschätzte kumulierte Plutoniumerzeugung der westlichen Welt.

kumulativ betrachtet) als Nebenprodukt der Kernenergieerzeugung anfallen wird, bereits in der Größenordnung von etwa 40 t Pu spaltbar (ca. 50 t Pu total) liegen wird. Bis zum gleichen Jahr muß mit einer kumulierten Plutoniumerzeugung in der westlichen Welt von etwa 160 t Pu spaltbar, entsprechend ungefähr 200 t Pu total gerechnet werden.

Bis 1980 200 t Pu in der Welt

Der deutsche Anteil an der Gesamteerzeugung ist verhältnismäßig gering. Er liegt im Jahre 1970 noch unter 1 % und wächst bis 1980 bis auf etwa 5 %. Demgegenüber fällt in den Vereinigten Staaten bis zu diesem Zeitpunkt etwa die Hälfte des gesamten in der westlichen Welt erzeugten Plutoniums an.

Der voraussichtliche Plutoniumbedarf wird im wesentlichen verursacht durch

- Forschungs- und Entwicklungsprogramme für Schnelle Brüter, in der Bundesrepublik z. B. SNEAK (Schnelle Null-Energie-Anordnung Karlsruhe) und KNK-II (Kompakte Natriumgekühlte Anlage Karlsruhe, II. Kern);
- Betrieb von Schnellbrüter-Prototypen, in der Bundesrepublik z. B. SNR (Schneller Natriumgekühlter Reaktor);
- Programme zur Erprobung von plutoniumhaltigem Brennstoff in thermischen Reaktoren (Pu-„Recycling"), in der Bundesrepublik z. B. im VAK (Versuchsanlage Kahl), geplant für den KWO-Reaktor in Obrigheim.

Stellt man den voraussichtlichen Gesamtbedarf für die heute bekannten Programme in der westlichen Welt der erwarteten kumulierten Plutoniumerzeugung gegenüber, so tritt bereits Anfang der 70er Jahre ein Plutoniumüberschuß auf, der bis 1980 beträchtlich zunehmen wird. Er dürfte 1975 etwa 20 t Plutonium gesamt (entsprechend ca. 50 % der bis dahin kumulierten Erzeugung) ausmachen, wird jedoch bis 1980 auf etwa 120 t Plutonium gesamt (entsprechend 3/4 der bis dahin kumulierten Erzeugung) angewachsen sein. In Anbetracht dieser verfügbaren großen Plutoniummengen und angesichts der Tatsache, daß sich die Schnellbrüter-Entwicklung fast überall verzögert, ergibt sich zwangsläufig die Notwendigkeit, das Plutonium in thermische Reaktoren zurückzuführen. Der Wert des Plutoniums ist systembezogen, d. h. er hängt davon ab, in welchen Reaktoren das Plutonium eingesetzt wird.

Bewertung von Pu

Wegen seiner günstigen reaktorphysikalischen Eigenschaften für schnelle Neutronen wird Plutonium als Brennstoff im Schnellen Brutreaktor verwendet. Aufgrund seiner gegenüber dem Uran günstigeren reaktorphysikalischen Eigenschaften kann 1 Gramm Plutonium, je nach seiner Isotopenzusammensetzung, im Schnellen Brüter etwa 1,4 Gramm U-235 ersetzen. Multipliziert man den Wert 1,4, den man auch als „Wirkungsäquivalent" des Plutoniums bezeichnet, mit dem U-235-Preis, so erhält man (vereinfacht) den reaktorphysikalischen Äquivalenzwert des Plutoniums für den Ein-

satz in Schnelle Brüter zu etwa 14 $/g Pu spaltbar, entsprechend DM 45,—/g Pu spaltbar.

Bei der thermischen Rückführung liegt das Wirkungsäquivalent des Plutoniums, je nach den Randbedingungen, etwa zwischen 0,8 und 1,2; wir können es vereinfacht mit etwa 1 ansetzen. Das bedeutet, daß im Leichtwasserreaktor 1 Gramm U-235 durch 1 Gramm Pu spaltbar ersetzt werden kann. Der reaktorphysikalische Äquivalenzwert des Plutoniums beim Einsatz im Leichtwasserreaktor liegt demnach knapp unter 10 $/g Pu spaltbar, entsprechend ca. DM 32,—/g Pu spaltbar.

Entscheidend für den wirtschaftlichen Einsatz des Plutoniums ist jedoch nicht sein reaktorphysikalischer Äquivalenzwert, sondern sein sogenannter „Indifferenzwert", der sich bei Berücksichtigung der erhöhten Fabrikationsmehrkosten für plutoniumhaltige Brennelemente ergibt. Dieser Wert ist heute praktisch = 0. Er kann jedoch mit sinkenden Verarbeitungskosten für Pu-haltigen Brennstoff mit einer Erhöhung rechnen. Zu Beginn der zweiten Hälfte der 70er Jahre wird man einen Plutoniumwert von etwa 6 – 7 $/g Pu spaltbar, entsprechend 19 – 23 DM/g Pu spaltbar erwarten können. Ein Wert von 8 $/g Pu spaltbar, entsprechend ca. 26 DM/g Pu dürfte etwa die obere Grenze für den Indifferenzwert des Plutoniums bei der thermischen Rückführung darstellen, weil man selbst unter günstigsten Umständen eine Plutonium-Hantierungspönale von mindestens 20 % der Fertigungskosten für gleichartige Uranelemente erwarten kann. (Preis von 1 g U-235 hoher Anreicherung heute etwa 10 $).

7.3 Sonstige Stoffe

Verwertung von Spaltprodukten

In den Abfall-Lösungen der Wiederaufarbeitungsanlagen fallen Spaltprodukte und Aktinidenelemente an. Die Spaltprodukte entstehen bei der Kernspaltung des Urans im Reaktor, während die Aktinidenelemente durch wechselweisen Neutroneneinfang und Betazerfall aus dem Uran aufgebaut werden. In einem Leichtwasserreaktor mit einem mittleren Abbrand von etwa 30 000 MWd/t U werden pro kg U ca. 32 g Spaltprodukte und ungefähr 0,5 g Aktinidenelemente gebildet (vgl. Tab. 10).

Die wichtigsten im Brennstoff nach der Abklingzeit (ca. 6 Monate) noch vorhandenen Elemente sind folgende:

- Strontium-90, Cäsium-137, Cer-144, Promethium-147 (metallische Spaltprodukte mit hoher spezifischer γ-Aktivität)
- Technetium-99, Ruthenium-106, Rhodium-106, Palladium-107 (metallische Spaltprodukte mit geringer spezifischer γ-Aktivität)

- Krypton-85
  Xenon (gasförmige Spaltprodukte)

- Neptunium-237
  Americium-241 und -243 (Aktinidenelemente, α-Strahler)
  Curium-242 und -244

Tabelle 12 gibt einen Überblick darüber, welche Einsatzmöglichkeiten für die genannten Spaltprodukte und Aktinidenelemente derzeit bestehen. Nur auf einigen Anwendungsgebieten ist es bereits heute in größerem Umfang zu einem Einsatz gekommen, z. B. bei der industriellen Anwendung schwacher, radioaktiver Quellen in der Meßtechnik und Produktionsüberwachung sowie beim Einsatz von Spaltprodukten mit höherer spezifischer Aktivität als Strahlenquelle. Entwicklungsprogramme zur Nutzung von Spaltprodukten und Aktinidenelementen in Isotopenbatterien (Herzschrittmacher) und Wärmequellen lassen eine Ausdehnung auf diesen Anwendungsbereich erwarten.

Tab. 12: Einsatzmöglichkeit für Spaltprodukte und Aktinidenelemente

Isotop	Isotopenbatterien, Wärmequellen	Strahlenquellen	Lichtquellen	Ausgangsmaterial f. schwere Isotope	Verschiedene industrielle Anwendungen
Sr-90	×	×			
Cs-137	×	×			
Ce-144	×	×			
Pm-147	×	×			
Tc-99					×
Ru-106	×				×
Rh-106					×
Pd-107					×
Kr-85		×	×		
Xe			×		
Np-237				× (Pu-238)	
Am-241	×			× (Am-242)	
Am-243				× (Cm-244)	
Cm-242	×				
Cm-244	×			× (schwere Aktiniden)	

